



Contribution à la métrologie de l'indice de réfraction et de l'absorption non-linéaires en régime nanoseconde : amélioration de la méthode de Z-scan et simulations numériques

Thomas Olivier

► To cite this version:

Thomas Olivier. Contribution à la métrologie de l'indice de réfraction et de l'absorption non-linéaires en régime nanoseconde : amélioration de la méthode de Z-scan et simulations numériques. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université de droit, d'économie et des sciences - Aix-Marseille III, 2004. Français. NNT : . tel-00009261

HAL Id: tel-00009261

<https://theses.hal.science/tel-00009261>

Submitted on 13 May 2005

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

pour obtenir le grade de **Docteur en Sciences**
de l'Université de Droit, d'Économie et des Sciences d'Aix-Marseille

Discipline : Optique - Électronique, Optronique et Systèmes

**Contribution à la métrologie de l'indice de réfraction et de
l'absorption non-linéaires dans le régime nanoseconde :
amélioration de la méthode de Z-scan et simulations numériques**

soutenue publiquement le **15 janvier 2004** par

Thomas Olivier

École Doctorale : Physique & Sciences de la Matière

Rapporteurs : Mme Solange DEBRUS
M. Guy VITRANT

Examineurs : M. Hassan AKHOUAYRI
M. Claude AMRA
M. Georges BOUDEBS
Mme Solange DEBRUS
M. Philippe DELAPORTE
M. Jean-Michel JONATHAN
M. Guy VITRANT

Remerciements

CE travail de thèse a été réalisé à l'Institut Fresnel (U.M.R. C.N.R.S., Département des Sciences Pour l'Ingénieur), dans le cadre d'une allocation de recherche du Ministère de l'Education Nationale, de la Recherche et de la Technologie.

TOUT d'abord, je tiens à exprimer toute ma gratitude à Monsieur Claude AMRA, directeur de l'Institut Fresnel, pour m'avoir permis de mener ce travail de recherche au sein de l'équipe Milieux Aléatoires et Photonique de Puissance de l'Institut Fresnel et pour avoir accepté de faire partie de mon jury.

JE suis particulièrement honoré de l'intérêt que Madame Solange DEBRUS¹ et Monsieur Guy VITRANT² ont bien voulu porter à ce travail en acceptant d'en être les rapporteurs. De la même manière, je suis très reconnaissant envers Messieurs Jean-Michel JONATHAN³, Georges BOUDEBS⁴ et Philippe DELAPORTE⁵ pour l'honneur qu'ils me font d'avoir accepté également de faire partie de mon jury.

MES remerciements s'adressent aussi à Monsieur Hassan AKHOUAYRI, professeur à l'E.G.I.M, qui a été mon directeur de thèse. Sa disponibilité, ses compétences, sa rigueur, ainsi que sa grande honnêteté intellectuelle sont autant de qualités que j'ai apprécié pendant toute la durée de ce travail.

JE tiens également à remercier Monsieur Hervé BERCEGOL et le CEA/CESTA pour leur support financier dans le cadre du contrat : "Mesure de l'indice de réfraction non-linéaire en gamme nanoseconde", n° 4700001319.

JE ne sais comment remercier Franck BILLARD, doctorant à l'Institut Fresnel et très proche collaborateur, qui m'a apporté une aide précieuse, non seulement sur le plan professionnel, mais aussi sur le plan amical, ce qui fut particulièrement appréciable durant les périodes les plus difficiles de cette thèse.

QUE toute ma sympathie soit également exprimée ici à tous les membres passés et présents du laboratoire qui m'ont permis d'effectuer ce travail dans un cadre des plus agréables. En particulier, je tiens à remercier Laurent GALLAIS et les membres de la thématique endommagement laser du laboratoire pour leurs nombreux prêts de matériel, d'échantillons et finalement d'un laser qui m'a permis de terminer ce travail dans de bonnes conditions.

ENFIN, je tiens à remercier ma famille et mes amis pour leur inconditionnel soutien, mes compagnons de bureau qui me manquent déjà et Sophie GIRARDIN pour ses courageuses relectures.

¹chargé de recherche CNRS, Laboratoire d'Optique des Solides, Paris

²chargé de recherche CNRS, Laboratoire d'Electromagnétisme, Micro-ondes et Optoélectronique, Grenoble

³directeur de l'Ecole Supérieure d'Optique, Orsay

⁴MCF, Laboratoire Propriétés Optiques des Matériaux et Applications, Angers

⁵directeur de recherche CNRS, Laboratoire Lasers, Plasmas et Procédés Photoniques, Marseille

Table des matières

Introduction	7
1 L'indice de réfraction non-linéaire : théorie, mécanismes et mesure	11
1.1 Introduction	12
1.2 Introduction à l'optique des milieux non-linéaires	14
1.2.1 Les équations de Maxwell et les relations constitutives de la matière	14
1.2.2 Equation de Maxwell et relations constitutives en régime harmonique	17
1.2.3 Susceptibilité et effets non-linéaires du troisième ordre	20
1.2.4 Définition de l'indice de réfraction non-linéaire, conventions et relations utiles	23
1.2.5 Conclusion	26
1.3 Principaux mécanismes induisant une variation de l'indice de réfraction .	28
1.3.1 Réponse électronique non-résonante	28
1.3.2 Effets thermiques	28
1.3.3 Electrostriction	31
1.3.4 Réorientation moléculaire	34
1.4 Méthodes de mesure de l'indice de réfraction non-linéaire	34
1.4.1 Mélange à quatre ondes	35
1.4.2 Méthodes interférométriques	38
1.4.3 Etude de distorsion de faisceau	41
1.5 Conclusion	45
2 La méthode de Z-scan : principe et état de l'art	47
2.1 Introduction	48
2.2 Montage expérimental et généralités	48
2.2.1 Principe	48

TABLE DES MATIÈRES

2.2.2	Transmission normalisée	51
2.2.3	Défectivité	52
2.2.4	Influence du diamètre du diaphragme et mesure de l'absorption non-linéaire	53
2.2.5	Influence de la diffusion par l'échantillon	56
2.3	Modélisation	61
2.3.1	Rappels sur la propagation des faisceaux gaussiens	61
2.3.2	Cas d'échantillons fins	63
2.3.3	Cas d'échantillons épais	65
2.3.4	Cas de forts déphasages non-linéaires	69
2.4	Etude de matériaux non-linéaires par la méthode de Z-scan	70
2.4.1	Etude dans des liquides	70
2.4.2	Etude de semiconducteurs	71
2.4.3	Etude de matériaux particuliers	72
2.4.4	Etudes spécifiques de l'absorption non-linéaire et comportements singuliers	73
2.5	Conclusion	74
3	Mise en place de la méthode de Z-scan pour la mesure de faibles indices de réfraction non-linéaire en régime nanoseconde	77
3.1	Introduction	78
3.2	Indice non-linéaire des verres optiques	78
3.2.1	Equation empirique de Boling, Glass et Owyong	79
3.2.2	Etudes expérimentales systématiques récentes	81
3.3	Détermination de la configuration expérimentale adaptée à notre cadre d'étude	81
3.3.1	Cadre d'étude : autofocalisation et endommagement laser	81
3.3.2	Problématique de la mesure dans la silice en régime nanoseconde	82
3.3.3	Méthode de Z-scan et puissance critique	83
3.3.4	Détermination de la focalisation optimale	84
3.3.5	Conclusion	86
3.4	Principe de fonctionnement et caractéristiques des lasers utilisés	87
3.4.1	Principe de base des lasers Nd :YAG à Q-switch	87
3.4.2	Caractéristiques générales des lasers utilisés	87

3.4.3	Qualité de faisceau : généralités et estimation	89
3.5	Mise en forme et caractérisation du faisceau incident	92
3.5.1	Filtrage spatial classique	92
3.5.2	Mise en forme particulière	93
3.5.3	Mise en forme et caractérisation du faisceau issu du laser faiblement multimode	95
3.5.4	Mise en forme et caractérisation du faisceau issu du laser fortement multimode	99
3.6	Mise en place expérimentale et caractérisation	102
3.6.1	Energie et stabilité en énergie	102
3.6.2	Montage expérimental	106
3.6.3	Signal à vide et corrélation des voies de mesure	110
3.6.4	Etude des caractéristiques temporelles du faisceau incident	113
3.7	Conclusion	116
4	Simulations numériques adaptées à une configuration de Z-scan quelconque	119
4.1	Introduction	120
4.2	Simulation numérique du faisceau incident	121
4.2.1	Description du problème	121
4.2.2	Rappels sur la théorie scalaire de la diffraction et approximation de Fresnel	122
4.2.3	Schéma de propagation d'un plan à un autre	124
4.2.4	Transformation de Hankel numérique	125
4.2.5	Remarques sur la mise en forme du faisceau	128
4.2.6	Simulation numérique du faisceau incident	130
4.3	Simulation numérique de l'autofocalisation dans un échantillon épais	133
4.3.1	Introduction aux études théoriques de l'autofocalisation	133
4.3.2	Méthode de Feit et Fleck en symétrie cylindrique	135
4.3.3	Simulations dans le cas d'un faisceau gaussien	138
4.3.4	Simulations en présence d'absorption	142
4.3.5	Simulations dans le cas d'un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée"	146
4.3.6	Linéarité de la méthode en fonction de Δn	149
4.4	Conclusion	151

5	Interprétation des mesures, étude des erreurs et études de l'indice de réfraction non-linéaire de la silice et du BK7	153
5.1	Introduction	154
5.2	Analyse du signal expérimental mesuré	154
5.2.1	Définition de la transmission normalisée instantanée/intégrée	155
5.2.2	Expression de la transmission normalisée intégrée en fonction des paramètres du faisceau	156
5.3	Estimation des erreurs	159
5.3.1	Conséquences des fluctuations du laser sur la transmission normalisée	159
5.3.2	Linéarité en fonction de l'énergie	163
5.3.3	Erreurs d'étalonnage	166
5.3.4	Autre source d'erreur : utilisation hors de la plage de linéarité en Δn	168
5.4	Etude dans la silice avec une durée d'impulsion de 20 ns	171
5.4.1	Conditions de l'étude	171
5.4.2	Résultats à 1ω	172
5.4.3	Résultats à 2ω	173
5.4.4	Estimation de l'indice de réfraction et commentaires	174
5.5	Etude dans la silice avec une durée d'impulsion de 7 ns	176
5.5.1	Conditions de l'étude	176
5.5.2	Résultats à 1ω	176
5.5.3	Résultats à 2ω	179
5.5.4	Conclusion des études dans la silice	180
5.6	Etude dans le BK7 avec une durée d'impulsion de 7 ns	182
5.6.1	Résultats à 1ω	182
5.6.2	Résultats à 2ω	183
5.7	Conclusion	189
	Conclusion	191
	A Conversion entre les systèmes MKS et CGS	195
	B Puissance critique d'autofocalisation	197
B.1	Estimation dans le cas de l'approximation paraxiale	197
B.2	Etude de l'autofocalisation autour de la puissance critique avec un modèle non-paraxial	200

C Principe de fonctionnement des lasers Nd :YAG à Q-switch	203
C.1 Introduction des pertes dans la cavité	203
C.2 Pompage	203
C.3 Durée d'impulsion	204
C.4 Modes longitudinaux et battements	204
D Calculs explicites du modèle de propagation de Feit et Fleck en symétrie cylindrique	207
E Propriétés optiques linéaires de quelques verres silicates	211
E.1 Diagramme d'Abbe : indice et dispersion	211
E.2 Absorption linéaire	211
Bibliographie	223

Introduction

Dès l'apparition des premiers lasers impulsionnels, la tenue au flux des composants a très vite posé une limitation à la densité de puissance et d'énergie qu'il était possible d'atteindre et de propager dans les systèmes lasers. Si la qualité des composants optiques et notre compréhension des mécanismes d'endommagement laser se sont considérablement améliorées, certaines applications nécessitent encore d'augmenter la tenue au flux des composants optiques, comme le projet Laser Mégajoule développé par le CEA pour amorcer la fusion thermonucléaire. En particulier, l'une des étapes critiques de ce projet concerne la traversée des hublots de la chambre où sera amorcée la fusion. Ces hublots de silice, de plusieurs centimètres d'épaisseur, vont être traversés par un faisceau ultraviolet, de durée d'impulsion de l'ordre de la nanoseconde, véhiculant une très grande densité d'énergie et de puissance répartie sur plusieurs dizaines de centimètres de largeur.

Dans le régime nanoseconde, la densité de puissance, mais également la densité d'énergie sont très importantes. Ainsi, les mécanismes qui peuvent mener à un endommagement du matériau sont nombreux et d'origines variées. Par exemple, une très grande puissance de faisceau peut engendrer de l'autofocalisation et donc un accroissement local de l'amplitude du champ électromagnétique. D'autre part, même lorsqu'elle ne mène pas à l'endommagement du matériau, l'autofocalisation amplifie les fluctuations spatiales du faisceau et dégrade le front d'onde, induisant des pertes de puissance lorsqu'on désire ensuite le focaliser sur une cible. Ce phénomène d'autofocalisation est non seulement lié à la variation d'indice de réfraction qui est induite par l'amplitude élevée du champ électrique, mais aussi, en régime nanoseconde, à toute autre variation d'indice de réfraction induite par un mécanisme opto-mécanique ou encore thermo-optique.

La silice est un des matériaux qui supporte le mieux le flux laser et son indice de réfraction non-linéaire est particulièrement faible. Son utilisation est donc privilégiée, voire

indispensable pour les applications impliquant de fortes puissances. Toutefois, vu la valeur élevée de la puissance qu'il est aujourd'hui possible d'atteindre dans les chaînes laser telles que celles du Laser Mégajoule, le phénomène d'autofocalisation n'est pas négligeable et peut poser problème. Ainsi, il est crucial de connaître avec précision la valeur de l'indice de réfraction non-linéaire, et notamment dans le régime nanoseconde où les mécanismes de variation d'indice de réfraction photo-induite peuvent avoir de multiples origines. Dans ce cadre, nous proposons d'étudier et de mettre en place une méthode de mesure adaptée et sensible. En outre, nous cherchons à maîtriser parfaitement la métrologie de l'indice de réfraction non-linéaire en analysant, de manière critique, la méthode utilisée, et en développant un algorithme de simulation numérique très général. Dans ces conditions, des outils expérimentaux et numériques d'étude des non-linéarités cubiques ont donc été développés. Ces outils s'inscrivent parfaitement dans la thématique de l'équipe Milieux Aléatoires et Photonique de Puissance de l'Institut Fresnel qui maîtrise déjà la métrologie de la diffusion lumineuse, de l'absorption et de l'endommagement laser dans les composants optiques.

Dans le premier chapitre, le formalisme de l'optique non-linéaire est introduit afin de définir correctement ce que l'on entend par "indice de réfraction non-linéaire". Ceci nous permettra également de nous familiariser avec l'optique non-linéaire et nous aidera à mieux comprendre la problématique de la métrologie de l'indice de réfraction non-linéaire. D'autre part, les principaux mécanismes pouvant engendrer une variation d'indice de réfraction photo-induite sont présentés et nous estimons leur influence respective dans le cas d'une mesure dans la silice en régime nanoseconde. Enfin, les différentes méthodes de mesures de l'indice de réfraction non-linéaire sont présentées et expliquées, afin de déterminer la méthode la plus adaptée à notre étude et, une fois de plus, insister sur la problématique de la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire.

Dans le deuxième chapitre, la méthode de Z-scan, que nous avons adoptée pour effectuer cette étude, est présentée en détail. Cette méthode a été mise en place pour la première fois en 1989, par M. Sheik-Bahae et ses collaborateurs [1], principalement pour l'étude de systèmes limiteurs optiques. Depuis, cette méthode a suscité beaucoup d'intérêt pour sa simplicité de mise en oeuvre et sa sensibilité. Ce chapitre a pour but de dresser un état de l'art de cette méthode de mesure à partir des études théoriques et des nombreuses études expérimentales de la littérature, ainsi que de notre propre expérience du sujet, afin

de préciser certains points rarement abordés. Après avoir détaillé le principe de base de cette méthode, nous nous attardons sur certaines de ses limites et nous présentons les différents modèles analytiques développés dans le cas de faisceaux gaussiens pour interpréter les mesures et déduire l'indice de réfraction non-linéaire. Enfin, nous présentons les études expérimentales menées dans une large gamme de matériaux non-linéaires, afin d'avoir une vue globale des possibilités de cette méthode.

Dans le troisième chapitre, nous utilisons les connaissances et l'expérience acquise dans les premiers chapitres pour mettre en place un montage expérimental adapté à notre problématique : l'étude de l'indice de réfraction non-linéaire des verres optiques, et, plus particulièrement de la silice en régime nanoseconde. Cette mise en place expérimentale est particulièrement délicate puisque notre cadre d'étude nous oblige à utiliser la méthode de Z-scan à ses limites. Nous devons apporter un soin tout particulier à la mise en place d'un tel montage. En effet, nous voulons utiliser la méthode pour mesurer un indice de réfraction non-linéaire plusieurs ordres de grandeurs au-dessous de celui des matériaux testés habituellement, et ce avec des faisceaux véhiculant une grande densité d'énergie, proche de celle de l'endommagement du matériau. Outre le gain en sensibilité nécessaire, nous voulons maîtriser la métrologie, afin de réduire au minimum l'erreur absolue sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire. Toutes ces contraintes ont conduit à adopter une configuration expérimentale optimisée pour notre cadre d'étude, particulièrement bien contrôlée et qui permet des caractérisations in-situ répétées des paramètres spatio-temporels réels du faisceau incident.

Dans le quatrième chapitre, nous proposons une étude numérique de la méthode de Z-scan dans le cas d'un faisceau quelconque et d'une configuration expérimentale arbitraire. En effet, afin de réduire les erreurs commises sur le modèle et ainsi parfaitement maîtriser cette méthode de mesure, il convient de développer une approche numérique adaptée à tout type de configuration expérimentale. L'algorithme développé pour interpréter les mesures réalisées sur notre banc est basé, d'une part, sur un algorithme de propagation du faisceau incident utilisant le principe de Huygens-Fresnel et, d'autre part, sur un algorithme de propagation pas à pas dans l'échantillon non-linéaire. Ces deux algorithmes nous permettent alors d'étudier les limites de validité des différents modèles analytiques développés et d'évaluer l'effet de certaines approximations lourdes de conséquences, pouvant conduire à d'importantes erreurs sur la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire.

Enfin, la grande versatilité de ce genre d'algorithme nous permet d'envisager tous les types de configuration expérimentale (succession de matériaux différents, mesures de la transmission normalisée en champ proche, faisceaux singuliers, etc...) et tous les types de matériau (matériaux absorbants, présentant de l'absorption non-linéaire ou même des matériaux ayant des comportements non-linéaires singuliers comme des matériaux photo-réfractifs ou des absorbants saturables). Par ailleurs, cet algorithme permet d'étudier avec précision l'autofocalisation et la déformation du faisceau qui a lieu à l'intérieur de l'échantillon.

Enfin, dans le cinquième chapitre, nous mettons à profit l'outil expérimental très sensible et l'outil théorique général que nous avons développé à l'Institut Fresnel, afin de réaliser une mesure de l'indice de réfraction non-linéaire de la silice et d'un verre borosilicate. Dans un premier temps, nous faisons une analyse rigoureuse du signal expérimental mesuré afin de faire le lien entre les résultats expérimentaux et les simulations numériques, et de déterminer les paramètres expérimentaux pertinents à mesurer et à injecter dans les simulations. Cette analyse nous permet également d'étudier les erreurs commises sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire. Dans un second temps, nous présentons les résultats des études menées à 1064 nm et 532 nm dans la silice avec deux lasers fournissant des durées d'impulsions nanosecondes différentes et dans le BK7. Ainsi, nous montrons la sensibilité de notre montage et la possibilité d'une mesure d'indices de réfraction non-linéaires aussi faibles que celui de la silice, et ce à $\pm 12\%$ près à 1064 nm et à $\pm 16\%$ près à 532 nm .

Chapitre 1

L'indice de réfraction non-linéaire : théorie, mécanismes et mesure

Ce premier chapitre a pour but, tout d'abord, d'introduire le formalisme de l'optique non-linéaire. L'étude sera rapidement restreinte à notre cadre d'étude, c'est à dire aux non-linéarités du troisième ordre (ou non-linéarités cubiques) dans les milieux isotropes centrosymétriques. Cette analyse nous permettra de définir avec précautions la notion d'indice de réfraction non-linéaire, rendant compte des variations d'indice de réfraction photo-induites. Dans le cadre de l'étude de l'autofocalisation en régime nanoseconde, nous verrons qu'une variation d'indice de réfraction photo-induite peut provenir de plusieurs mécanismes, dépendant des propriétés intrinsèques du matériau choisi, mais également des caractéristiques du champ électromagnétique appliqué et de la configuration de mesure choisie. Pour mesurer de telles variations d'indices, plusieurs types de méthode sont disponibles, dont nous détaillerons le principe, afin de déterminer la plus adaptée à notre cadre d'étude.

1.1 Introduction

L'apparition du laser dans les années 60, a fourni une nouvelle source de lumière particulière, dont la monochromaticité et la grande cohérence permettent d'en concentrer la puissance dans le temps et dans l'espace. En concentrant la puissance lumineuse fournie par un laser dans le temps et dans l'espace, la densité spatiale de puissance a pu rapidement atteindre des valeurs de l'ordre de 1 GW/cm^2 . Ceci correspond à une amplitude du champ électrique de $5 \times 10^7\text{ V/m}$. Cette valeur n'est plus négligeable devant le champ électrique qui lie électrons et noyaux au niveau microscopique ($\approx 5 \times 10^{11}\text{ V/m}$). Les interactions entre onde électromagnétique et matériau diélectrique mènent alors à des comportements complexes et singuliers comme la conversion de fréquence ou une variation d'indice de réfraction photo-induite du matériau, pour ne citer que les effets les plus connus. C'est de ce type d'effets dont traite l'optique non-linéaire.

Lorsque la lumière du laser a été particulièrement concentrée dans le temps, comme dans le cas des lasers à impulsions femtosecondes ou même picosecondes, la densité spatiale de puissance du faisceau peut atteindre des valeurs extrêmement élevées (de l'ordre du TW/cm^2), mais la densité d'énergie véhiculée par une seule impulsion reste relativement faible (inférieure au J/cm^2). Dans ce genre de régime, les effets non-linéaires observés sont principalement liés à des mécanismes électroniques rapides. Si la densité de puissance est suffisamment importante, il est même possible de produire un endommagement de matériaux transparents, défini comme toute modification irréversible du matériau. L'énergie des impulsions étant particulièrement faible dans ce cas, aucun phénomène autre qu'électronique ne peut entrer en jeu dans le mécanisme d'endommagement, en particulier, aucun phénomène thermique n'a le temps de se développer et, d'une manière générale, aucun mécanisme cumulatif ne peut entrer en jeu vu la faible durée d'impulsion, si toutefois le taux de répétition est également faible (typiquement inférieur à plusieurs kHz). Dans ce cas, l'endommagement est provoqué principalement par des mécanismes d'ionisation [2, 3, 4] ou de claquage diélectrique. Le phénomène d'endommagement peut être également accentué dans ce cas par la présence d'inhomogénéités [5] induisant des augmentations locales du champ ou encore par le phénomène d'autofocalisation qui mène également à un accroissement local du champ.

Dans le régime nanoseconde, la répartition de puissance peut également atteindre des valeurs très élevées, de l'ordre du GW/cm^2 , mais cette forte densité de puissance s'accom-

pagne alors d'une densité spatiale d'énergie également élevée, pouvant atteindre plusieurs centaines de J/cm^2 . Dans ce cas, les effets non-linéaires ne sont plus simplement issus de mécanismes purement électroniques. Nous verrons que le mécanisme d'électrostriction, par exemple, doit être pris en compte. La forte dose d'énergie qui traverse le matériau peut être partiellement convertie en chaleur par absorption et mener à un échauffement et donc à une variation d'indice de réfraction. Des contraintes photo-induites peuvent mener à la propagation d'ondes acoustiques dans le milieu (effets Brillouin [6, 7]). De la même manière, les mécanismes qui mènent à un endommagement sont beaucoup plus variés car ils peuvent être maintenant non seulement d'origine électronique, mais aussi d'origine thermique ou issus de contraintes. Le rôle de chaque mécanisme dans le processus d'endommagement dépend des propriétés électroniques, optiques, mécaniques et thermiques du matériau, mais aussi des caractéristiques de l'onde incidente (longueur d'onde, durée d'impulsion, puissance totale). Par ailleurs, la présence de défauts, d'inhomogénéités ou encore d'inclusions [8, 9, 10, 11, 12, 13, 14, 15, 16] complique encore les mécanismes non-linéaires et les mécanismes de l'endommagement laser.

L'endommagement laser et ses mécanismes sont étudiés pratiquement depuis l'apparition du laser. Si la métrologie de l'endommagement est aujourd'hui bien maîtrisée, et ce, dans différentes configurations [17, 18, 19, 20, 21, 22, 23], la compréhension des mécanismes est un sujet qui intéresse de nombreux scientifiques car il reste encore de nombreuses avancées à faire dans ce domaine. Notamment, du fait du grand nombre de mécanismes mis en oeuvre dans le processus d'endommagement, il n'est pas toujours facile de comparer les résultats obtenus dans différents laboratoires [24, 25]. Dans ce contexte, il est intéressant d'étudier un ou plusieurs des mécanismes qui entrent en jeu dans le processus d'endommagement laser, notamment en régime nanoseconde où le processus d'endommagement est très complexe. Le phénomène d'autofocalisation, lié à la variation d'indice de réfraction photo-induite, peut considérablement aggraver le processus d'endommagement en concentrant la puissance et l'énergie du faisceau sur une zone de plus en plus réduite. Même lorsqu'il ne mène pas à un endommagement, ce phénomène dégrade la qualité spatiale du faisceau, pouvant induire des pertes considérables lorsqu'on cherche ensuite à le focaliser. Dans cette optique, l'étude des variations photo-induites de l'indice de réfraction sont capitales pour aider à comprendre les mécanismes de l'endommagement laser.

La variation d'indice de réfraction photo-induite provient principalement de mécanismes électroniques menant à un effet non-linéaire du troisième ordre. La susceptibilité non-linéaire du troisième ordre permet de décrire ces mécanismes électroniques. Il existe plusieurs conventions pour définir cette susceptibilité non-linéaire du troisième ordre, plusieurs façon de définir un indice de réfraction non-linéaire à partir de la susceptibilité, et, bien que le système d'unité MKS soit très largement répandu, le système CGS est encore couramment utilisé. La comparaison entre deux valeurs de l'indice de réfraction non-linéaire doit donc toujours être faite avec prudence. Par ailleurs, les effets non-linéaires du troisième ordre sont d'une grande diversité et ne donnent pas tous naissance à une variation d'indice de réfraction. Par ailleurs, l'amplitude du phénomène de réfraction non-linéaire dépend a priori de la configuration expérimentale adoptée. Nous verrons par exemple que la polarisation du champ électrique peut avoir une influence, ou encore que l'utilisation d'une configuration pompe-sonde n'engendre pas la même variation d'indice de réfraction. Enfin, une variation d'indice de réfraction photo-induite peut avoir diverses origines et chaque mécanisme conduit a priori à un comportement différent de l'indice de réfraction non-linéaire vis à vis, par exemple, du régime temporel utilisé, de la méthode de mesure adoptée ou encore de la polarisation du champ électrique.

Il est donc raisonnable, dans un premier temps, de définir convenablement la notion d'indice de réfraction non-linéaire à partir du formalisme électromagnétique des équations de Maxwell et des relations constitutives qui permettent d'introduire le tenseur de susceptibilité non-linéaire, puis l'indice de réfraction non-linéaire dans un second temps. Les principaux mécanismes physiques pouvant donner lieu à une variation d'indice méritent également d'être cités et rapidement étudiés pour en estimer l'influence respective dans une configuration expérimentale donnée. Enfin, les principales méthodes de mesure de l'indice de réfraction non-linéaire seront présentées.

1.2 Introduction à l'optique des milieux non-linéaires

1.2.1 Les équations de Maxwell et les relations constitutives de la matière

Le champ électromagnétique est décrit par le vecteur champ électrique $\vec{\mathcal{E}}$ et le vecteur champ magnétique $\vec{\mathcal{H}}$. Les relations constitutives qui décrivent l'influence du champ

électromagnétique sur la matière nous permettent d'introduire le vecteur déplacement électrique $\vec{\mathcal{D}}$ et le vecteur induction magnétique $\vec{\mathcal{B}}$. Dans le cas général, il faut aussi considérer les éventuelles densités volumiques de charge ρ et de courant $\vec{\mathcal{J}}$. Toutes ces grandeurs sont des fonctions de la variable d'espace \vec{r} (vecteur position dans le repère considéré) et du temps t .

Pour des milieux non-magnétiques, c'est à dire, de perméabilité magnétique égale à celle du vide μ_0 , les équations de Maxwell sont données par [26] :

$$\overrightarrow{rot} \vec{\mathcal{E}}(\vec{r}, t) = -\mu_0 \frac{\partial \vec{\mathcal{H}}(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (1.1)$$

$$\overrightarrow{rot} \vec{\mathcal{H}}(\vec{r}, t) = \frac{\partial \vec{\mathcal{D}}(\vec{r}, t)}{\partial t} + \vec{\mathcal{J}}(\vec{r}, t) \quad (1.2)$$

$$div \vec{\mathcal{D}}(\vec{r}, t) = \rho(\vec{r}, t) \quad (1.3)$$

$$div \vec{\mathcal{H}}(\vec{r}, t) = 0 \quad (1.4)$$

Les relations constitutives de la matière s'expriment alors de la manière suivante :

$$\vec{\mathcal{B}}(\vec{r}, t) = \mu_0 \vec{\mathcal{H}}(\vec{r}, t) \quad (1.5)$$

$$\vec{\mathcal{D}}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \vec{\mathcal{E}}(\vec{r}, t) + \vec{\mathcal{P}}(\vec{r}, t) \quad (1.6)$$

où $\vec{\mathcal{P}}$ représente la polarisation électrique du matériau. Ce terme est caractéristique de la réponse du matériau à un champ électromagnétique.

Par ailleurs, en l'absence de charge et de source de courant, la densité volumique de charge ρ est nulle et, pour un matériau non conducteur, $\vec{\mathcal{J}} = \vec{0}$.

Cas d'une réponse linéaire

Pour décrire la réponse instantanée $\vec{\mathcal{P}}^{(1)}(t)$ à un champ électrique $\vec{\mathcal{E}}(t)$, la notion de **susceptibilité électrique** est introduite. En toute rigueur, la réponse électrique d'un matériau à un champ électrique n'est pas instantanée [27]. En revanche, il est raisonnable de faire une hypothèse de **causalité** sur la réponse du matériau, c'est à dire de supposer qu'un champ nul à $t < 0$ entraîne une réponse nulle pour $t < 0$, ce qui signifie que la réponse ne peut précéder l'excitation [28]. Dans le cas linéaire, cette hypothèse conduit à introduire la notion de **filtrage linéaire**, traduit par un produit de convolution temporel entre le champ électrique $\vec{\mathcal{E}}$ et une distribution $T^{(1)}$ à support positif [27]. Pour la

composante i de la polarisation électrique, il vient (la dépendance spatiale est omise pour alléger les notations) :

$$\mathcal{P}_i^{(1)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{+\infty} T_{ij}^{(1)}(\tau) \mathcal{E}_j(t - \tau) d\tau \quad (1.7)$$

où la notation de sommation implicite d'Einstein a été utilisée ($a_{ij}b_j = \sum_j a_{ij}b_j$).

Il est à noter que $T_{ij}^{(1)}$ représente ici un tenseur de rang 2 dans le cas général d'un milieu anisotrope, puisque dans ce cas la réponse du milieu à chaque composante vectorielle du champ est a priori différente. Par la suite, nous nous placerons toujours dans le cas de milieux isotropes et uniformes, dans lesquels la susceptibilité linéaire est un tenseur diagonal comportant trois composantes égales et indépendantes de la position. Pour être plus précis et rester cohérent avec cette description, il est à noter que $T^{(1)}$ désigne la réponse impulsionnelle du milieu, appelée aussi **susceptibilité impulsionnelle** [27].

Cas d'une réponse non-linéaire

Dans le cas où l'amplitude du champ électrique devient particulièrement élevée, la réponse du matériau ne peut plus être considérée comme linéaire. Cependant, ces effets restent relativement faibles. Il est alors courant d'utiliser une décomposition de la polarisation du type [28] :

$$\vec{\mathcal{P}}(\vec{r}, t) = \vec{\mathcal{P}}^{(1)}(\vec{r}, t) + \vec{\mathcal{P}}^{(2)}(\vec{r}, t) + \vec{\mathcal{P}}^{(3)}(\vec{r}, t) + \dots \quad (1.8)$$

où $\vec{\mathcal{P}}^{(1)}$ désigne alors le terme linéaire de la polarisation, tandis que les autres composantes représentent les termes d'ordre supérieur à 1.

En toute rigueur, et suivant le même raisonnement que pour la polarisation linéaire, les termes d'ordre $n > 1$ peuvent s'exprimer comme des produits de convolutions entre les champs et un tenseur de rang $n + 1$. Dans ce travail, ce sont les effets non-linéaires du troisième ordre qui nous concernent. Nous nous placerons toujours dans le cas de milieux isotropes (et non gyrotropes), donc centrosymétriques¹ [29]. Or, pour des raisons de symétrie, les effets non-linéaires du second ordre sont théoriquement nuls dans un milieu centrosymétrique. Pour la composante i du vecteur de polarisation non-linéaire du

¹Par abus de langage, nous parlerons souvent par la suite de milieux isotropes pour désigner en fait des milieux isotropes centrosymétriques.

troisième ordre, il vient [28] :

$$\mathcal{P}_i^{(3)}(t) = \iiint_{-\infty}^{+\infty} T_{ijkl}^{(3)}(\tau, \tau', \tau'') \mathcal{E}_j(t - \tau) \mathcal{E}_k(t - \tau - \tau') \mathcal{E}_l(t - \tau - \tau' - \tau'') d\tau d\tau' d\tau'' \quad (1.9)$$

Dans ce cas, $T_{ijkl}^{(3)}$ désigne donc un tenseur de rang 4.

1.2.2 Equation de Maxwell et relations constitutives en régime harmonique

Equations de Maxwell en régime harmonique

Toutes les fonctions temporelles $\mathcal{F}(t)$ considérées précédemment peuvent être décomposées en une superposition de fonctions sinusoïdales de pulsation ω et d'amplitude $F(\omega)$ à l'aide de la transformation de Fourier suivante :

$$\mathcal{F}(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} F(\omega) \exp(-i\omega t) d\omega \quad \text{et} \quad F(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{F}(t) \exp(i\omega t) dt \quad (1.10)$$

En toute rigueur, en appliquant cette transformation aux équations de Maxwell, dans le cas d'un milieu non chargé et sans source de courant, le problème électromagnétique revient à résoudre le système suivant pour chaque pulsation ω du spectre de la lumière incidente :

$$\overrightarrow{\text{rot}} \vec{E}(\omega) = i\omega\mu_0 \vec{H}(\omega) \quad (1.11)$$

$$\overrightarrow{\text{rot}} \vec{H}(\omega) = -i\omega\vec{D}(\omega) \quad (1.12)$$

$$\text{div} \vec{D}(\omega) = 0 \quad (1.13)$$

$$\text{div} \vec{H}(\omega) = 0 \quad (1.14)$$

Remarque : En pratique, dans le cas de la lumière d'un laser, le support des champs $E(\omega)$ et $H(\omega)$ est très étroit, centré autour d'une pulsation ω_0 . L'approximation d'un régime harmonique monochromatique est alors faite et le problème est résolu pour la seule pulsation ω_0 . Il faut pourtant manipuler avec précautions ce type d'approximation dans le cas d'impulsions ultracourtes. En effet, d'après les propriétés de la transformation de Fourier, nous savons que largeur temporelle et largeur spectrale sont inversement proportionnelles ($\Delta t \Delta \omega \approx 2\pi$). Pour une longueur d'onde de centrage de $1 \mu m$ et une impulsion de $10 ns$, le rapport $\Delta \omega / \omega_0$ est de l'ordre de 10^{-7} . L'approximation monochromatique reste justifiée dans ce cas. En revanche, pour une impulsion de l'ordre de $10 fs$,

le rapport $\Delta\omega/\omega_0$ est alors de l'ordre de 10^{-1} et l'approximation devient injustifiée. Dans le cadre de ce travail, la durée d'impulsion est de l'ordre de quelques nanosecondes et l'approximation monochromatique est donc utilisée.

Relations constitutives : cas linéaire

Reprenons l'expression 1.6 du vecteur déplacement. Après application de la transformation de Fourier, le vecteur déplacement électrique en régime harmonique est maintenant défini par :

$$\vec{D}(\vec{r}, \omega) = \epsilon_0 \vec{E}(\vec{r}, \omega) + \vec{P}(\vec{r}, \omega) \quad (1.15)$$

Dans le cas linéaire, le produit de convolution 1.7 devient simplement, par transformation de Fourier, une relation du type :

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \vec{E}(\omega) \quad (1.16)$$

où $\chi^{(1)}$ représente maintenant la susceptibilité électrique en régime harmonique à la pulsation ω .

En introduisant la **permittivité électrique relative** $\epsilon_r(\omega) = 1 + \chi^{(1)}(\omega)$, le vecteur déplacement s'exprime simplement en fonction du champ électrique :

$$\vec{D}(\omega) = \epsilon_0 \epsilon_r(\omega) \vec{E}(\omega) \quad (1.17)$$

L'indice de réfraction linéaire est alors défini comme la racine carrée de la permittivité électrique relative :

$$n(\omega) = \sqrt{\epsilon_r(\omega)} \quad (1.18)$$

Notons que la permittivité est a priori complexe. L'indice de réfraction sera donc également complexe et comportera un terme de réfraction et un terme d'absorption. La racine carrée du nombre complexe ϵ_r devra donc être prise avec précaution.

Avec ces définitions, les équations de Maxwell harmoniques deviennent, en fonction des champ \vec{E} et \vec{H} :

$$\vec{\text{rot}} \vec{E}(\vec{r}, \omega) = i\omega\mu_0 \vec{H}(\vec{r}, \omega) \quad (1.19)$$

$$\vec{\text{rot}} \vec{H}(\vec{r}, \omega) = -i\omega\epsilon_0\epsilon_r(\omega) \vec{E}(\vec{r}, \omega) \quad (1.20)$$

$$\text{div} \vec{E}(\vec{r}, \omega) = 0 \quad (1.21)$$

$$\text{div} \vec{H}(\vec{r}, \omega) = 0 \quad (1.22)$$

où la dépendance spatiale a été réintroduite.

A partir de ces relations, l'équation de propagation de Helmholtz peut être établie dans tout milieu homogène d'indice n :

$$\nabla^2 \vec{E} + k^2 \vec{E} = 0 \quad \text{avec} \quad k^2 = \omega^2 \mu_0 \epsilon_0 n^2 \quad (1.23)$$

Nous utilisons dans ce document la notation ∇^2 pour désigner le laplacien, afin d'éviter toute confusion avec la notation Δ , permettant de désigner une différence. La même relation peut être établie pour le vecteur \vec{H} . Dans le cas linéaire, les équations de propagation pour les champs \vec{E} et \vec{H} sont découplées et il suffit de résoudre le problème électromagnétique pour un seul de ces champs. Par ailleurs, dans le cas isotrope, k est un scalaire et il n'y a pas non plus de couplage entre les différentes composantes vectorielles des champs. A ce stade, il est possible d'utiliser une décomposition en ondes planes du champ incident et en déduire le champ diffracté en utilisant des équations de propagation adaptées, ainsi qu'une condition d'onde sortante sur le champ diffracté et les conditions aux limites sur les interfaces du milieu.

Relations constitutives : cas non-linéaire

Par application de la transformation de Fourier sur le terme de la polarisation électrique du troisième ordre 1.9, la composante i du vecteur de polarisation électrique devient dans ce cas, en toute rigueur :

$$P_i^{(3)}(\omega_4) = \iiint_{-\infty}^{+\infty} \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3) d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3$$

avec $\omega_4 = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ (1.24)

Remarques : Notons que le tenseur de susceptibilité non-linéaire du troisième ordre, noté $\chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_4, \omega_1, \omega_2, \omega_3)$ est lié au tenseur $T_{ijkl}^{(3)}(\tau, \tau', \tau'')$ par une transformation de Fourier. La même notation que Boyd [6] a été utilisée pour la susceptibilité, c'est à dire que la pulsation somme ω_4 est indiquée en premier argument, suivie des trois pulsations interagissant.

Cette expression montre à quel point le problème de la propagation non-linéaire est complexe dans le cas général. Les différentes composantes fréquentielles du champ peuvent interagir au sein de la polarisation électrique. Par ailleurs, toutes les composantes du vecteur champ électrique peuvent influencer sur chaque composante de la polarisation. Pour

cette raison, les effets non-linéaires du troisième ordre sont très variés et dépendent fortement des symétries du matériau considéré, qui imposeront à leur tour des symétries ou des annulations de termes dans le tenseur de susceptibilité [29].

1.2.3 Susceptibilité et effets non-linéaires du troisième ordre

Cas général

L'objet de ce paragraphe est de présenter brièvement les différents effets non-linéaires du troisième ordre. Nous resterons tout d'abord dans un cadre général pour ensuite s'intéresser plus particulièrement aux effets non-linéaires potentiels dans le cas d'un matériau isotrope et d'un seul faisceau incident polarisé rectilignement. Cette dernière étape nous permettra de définir l'indice de réfraction non-linéaire tel qu'il a été mesuré dans ce travail.

Dans le cas de l'approximation monochromatique, l'intégrale triple sur toutes les pulsations de l'expression 1.24 se réduit à une somme discrète de plusieurs termes de polarisation pouvant donner naissance à autant de phénomènes non-linéaires différents au sein d'un même matériau. Lorsque le champ électrique est composé d'une superposition de N vibrations monochromatiques de pulsations ω_n (avec $1 \leq n \leq N$), la transformation de Fourier introduite à la relation 1.10 peut se réécrire sous la forme suivante, pour chaque composante vectorielle i du champ :

$$\mathcal{E}_i(t) = \frac{1}{2} \sum_{n=1}^N [E_i(\omega_n) \exp(-i\omega_n t) + E_i(-\omega_n) \exp(i\omega_n t)] \quad (1.25)$$

L'introduction du facteur $1/2$ n'est pas une convention universelle. Quelques auteurs n'introduisent pas ce facteur [30, 6]. Toutefois, l'absence de facteur $1/2$ mène à des définitions non-conventionnelles du vecteur de Poynting et ne rejoint pas les définitions du champ complexe traditionnelles d'électromagnétisme.

De la même manière, pour chaque composante i du vecteur polarisation électrique non-linéaire du troisième ordre, on a :

$$\mathcal{P}_i^{(3)}(t) = \frac{1}{2} \sum_{n=1}^N \left[P_i^{(3)}(\omega_n) \exp(-i\omega_n t) + P_i^{(3)}(-\omega_n) \exp(i\omega_n t) \right] \quad (1.26)$$

Pulsations impliquées	Terme de polarisation	Effet non-linéaire résultant
$\omega_1 \neq \omega_2 \neq \omega_3$	$P_i^{(3)}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3) = \frac{3}{2} \times \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3, \omega_1, \omega_2, \omega_3) \times E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l(\omega_3)$	mélanges à quatre ondes
$\omega_1 = \omega_2 = \omega_3 = \omega$	$P_i^{(3)}(3\omega) = \frac{1}{4} \times \chi_{ijkl}^{(3)}(3\omega, \omega, \omega, \omega) E_j(\omega) E_k(\omega) E_l(\omega)$	génération du troisième harmonique
$\omega_1 = \omega_2 = \omega$ et $\omega_3 = 0$	$P_i^{(3)}(2\omega) = \frac{3}{2} \times \chi_{ijkl}^{(3)}(2\omega, \omega, \omega, 0) E_j(\omega) E_k(\omega) E_l(0)$	génération de second harmonique en présence d'un champ statique
$\omega_1 = \omega$ et $\omega_2 = \omega_3 = 0$	$P_i^{(3)}(2\omega) = 3 \times \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega, \omega, 0, 0) E_j(\omega) E_k(0) E_l(0)$	effet Kerr en présence d'un champ statique (effet électro-optique du second ordre)
$\omega_1 = \omega_2$ et $\omega_3 = -\omega$	$P_i^{(3)}(2\omega_1 - \omega) = \frac{3}{4} \times \chi_{ijkl}^{(3)}(2\omega_1 - \omega, \omega_1, \omega_1, -\omega) \times E_j(\omega_1) E_k(\omega_1) E_l^*(\omega)$	diffusion Raman anti-Stokes cohérente
$\omega_1 \neq \omega_2$ et $\omega_3 = -\omega_1$	$P_i^{(3)}(\omega_2) = \frac{3}{2} \times \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega_2, \omega_1, \omega_2, -\omega_1) \times E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) E_l^*(\omega_1)$	effet Kerr optique, diffusions Raman et Brillouin stimulées, spectroscopie d'absorption en configuration pompe-sonde
$\omega_1 = \omega_2 = -\omega_3 = \omega$	$P_i^{(3)}(\omega) = \frac{3}{4} \times \chi_{ijkl}^{(3)}(\omega, \omega, \omega, -\omega) E_j(\omega) E_k(\omega) E_l^*(\omega)$	effet Kerr optique à un seul faisceau (autofocalisation, auto-modulation de phase, absorption à deux photons, auto-rotation de l'ellipse de polarisation)

TAB. 1.1 – Principaux termes possibles de polarisation du troisième ordre et désignation des effets non-linéaires résultants (source : réf. [28])

Le tableau 1.1 résume les principaux termes de polarisation non-linéaire du troisième ordre dans le cas général où le champ incident est une superposition de trois vibrations monochromatiques de pulsations ω_1 , ω_2 et ω_3 .

Pour comprendre d'où viennent ces termes il suffit de reprendre l'équation générale 1.24 dans le cas de vibrations monochromatiques et se souvenir que les composantes harmoniques du champ $E(\omega)$ ont été obtenues par transformation de Fourier d'une fonction réelle. Elles possèdent, par conséquent, la propriété de symétrie hermitienne $E(-\omega) = E^*(\omega)$.

Cas d'un milieu isotrope

Les tenseurs de susceptibilité non-linéaire du troisième ordre (de rang 4) sont théoriquement composés de $3^4 = 81$ éléments! Dans le cadre de ce travail, nous ne nous intéresserons qu'au cas de milieux isotropes. Outre le fait que l'on ne peut observer d'effets non-linéaires quadratiques dans de tels milieux, la grande symétrie d'un tel matériau simplifie considérablement le tenseur de susceptibilité qui ne compte finalement que 3 éléments indépendants non-nuls [28, 29, 6].

En toute rigueur, le tenseur de susceptibilité non linéaire du troisième ordre vaut dans ce cas (le système de coordonnées cartésiennes (x, y, z) est utilisé) :

$$\chi_{ijkl}^{(3)} = \chi_{xxyy}^{(3)} \delta_{ij} \delta_{kl} + \chi_{xyxy}^{(3)} \delta_{ik} \delta_{jl} + \chi_{xyyx}^{(3)} \delta_{il} \delta_{jk} \quad \text{avec} \quad \delta_{ij} = \begin{cases} 1 & \text{si } i = j \\ 0 & \text{si } i \neq j \end{cases} \quad (1.27)$$

Par la suite, le choix des pulsations des différentes vibrations interagissant va imposer un certain nombre de symétries supplémentaires sur ce tenseur de susceptibilité. Par exemple, dans le cas de la génération de troisième harmonique, il est possible de permuter les trois pulsations dans le tenseur de susceptibilité. Il ne reste qu'un seul terme indépendant dans ce cas particulier [29].

Dans le cas qui nous occupe, un seul faisceau est utilisé. Deux termes de polarisation non-linéaire peuvent entrer en ligne de compte : le terme de génération du troisième harmonique et le terme qui décrit l'effet Kerr optique à un faisceau². Dans le cadre de

²Ce terme regroupe donc les effets d'auto-modulation de phase, d'autofocalisation, d'auto-rotation de l'ellipse de polarisation et, dans le cas d'une forte partie imaginaire de la susceptibilité, le phénomène d'absorption non-linéaire à deux photons

ce travail, le faisceau incident parcourt une faible épaisseur de matériau. Par conséquent, l'effet d'auto-modulation de phase est négligeable. Différents termes de polarisation sont explicités dans le tableau 1.2, concernant le cas d'un milieu isotrope.

<p>Génération du troisième harmonique :</p> $\vec{P}^{(3)}(3\omega) = \frac{3}{4} \times \chi_{xxxy}^{(3)}(3\omega) [\vec{E} \cdot \vec{E}] \vec{E}$
<p>Effet Kerr optique à un seul faisceau :</p> $\vec{P}^{(3)}(\omega) = \frac{3}{4} \times \{2\chi_{xxxy}^{(3)}(\omega) [\vec{E} \cdot \vec{E}^*] \vec{E} + \chi_{xyyx}^{(3)}(\omega) [\vec{E} \cdot \vec{E}] \vec{E}^*\}$
<p>Effet Kerr optique en configuration pompe-sonde (ω_p, ω_s) :</p> $\begin{aligned} \vec{P}^{(3)}(\omega_s) = \frac{3}{2} \times \{ & \chi_{xxxy}^{(3)}(\omega_s, \omega_p) [\vec{E}_s \cdot \vec{E}_p^*] \vec{E}_p + \chi_{xyxy}^{(3)}(\omega_s, \omega_p) [\vec{E}_p \cdot \vec{E}_p^*] \vec{E}_s \\ & + \chi_{xyyx}^{(3)}(\omega_s, \omega_p) [\vec{E}_p \cdot \vec{E}_s] \vec{E}_p^* \} \end{aligned}$

TAB. 1.2 – *Milieu isotrope : Termes de polarisation pour différentes configurations expérimentales*

Seule l'étude théorique microscopique des mécanismes conduisant aux effets non-linéaires du troisième ordre permet ensuite de réduire encore le nombre de paramètres indépendants, mais dans le cas général, il faut considérer que les différents termes impliqués dans les expressions du tableau 1.2 sont indépendants.

1.2.4 Définition de l'indice de réfraction non-linéaire, conventions et relations utiles

Dans le cas de l'effet Kerr optique, il est pertinent de définir un indice de réfraction non-linéaire de la même manière que l'indice linéaire a été défini. Le tableau 1.3 donne l'expression théorique de cette susceptibilité dans quelques cas particuliers, obtenue à l'aide du tableau 1.2.

Configuration expérimentale	$\chi^{(3)}$	$\vec{P}^{(3)}$
effet Kerr optique à un seul faisceau polarisé rectilignement	$2 \times \chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)}$	$\frac{3}{4} \times \chi^{(3)} E ^2 \vec{E}$
configuration pompe-sonde, champs polarisés rectilignement parallèlement	$\chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)} + \chi_{xyxy}^{(3)}$	$\frac{3}{2} \times \chi^{(3)} E_p ^2 \vec{E}_s$
configuration pompe-sonde, champs polarisés rectilignement perpendiculairement	$\chi_{xyxy}^{(3)}$	$\frac{3}{2} \times \chi^{(3)} E_p ^2 \vec{E}_s$

TAB. 1.3 – Expressions de $\chi^{(3)}$ dans différents cas particuliers

Dans les expressions du vecteur polarisation, les facteurs 3/4 ou 3/2 ont été introduits pour rester cohérent avec les expressions de la polarisation introduites par le tableau 1.1 et éviter de confondre les facteurs introduits par le mélange des trois champs impliqués et ceux éventuellement introduits par les symétries du tenseur de susceptibilité.

Dans le cas qui nous occupe, c'est à dire celui de l'effet Kerr à un seul faisceau, une susceptibilité non-linéaire effective $\chi^{(3)}$ est donc introduite, pour que l'on ait simplement :

$$\vec{P}^{(3)}(\omega) = \frac{3}{4} \times \chi^{(3)}(\omega) \times |E(\omega)|^2 \vec{E}(\omega) \quad (1.28)$$

De la même façon que l'indice de réfraction linéaire avait été défini, l'indice de réfraction est maintenant défini par :

$$n^2 = 1 + \chi^{(1)} + \frac{3\chi^{(3)}(\omega)}{4\epsilon_0} |E(\omega)|^2 = n_0^2 \left(1 + \frac{3\chi^{(3)}(\omega)}{4n_0^2\epsilon_0} |E(\omega)|^2 \right) \quad (1.29)$$

où n_0 représente l'indice dans le cas linéaire.

L'amplitude de l'effet non-linéaire, caractérisée par le rapport $\chi^{(3)}|E(\omega)|^2/(n_0^2\epsilon_0)$ est, en général, très faible. Un développement limité au premier ordre de l'expression précédente permet d'obtenir la relation suivante :

$$n = n_0 + \frac{3\chi^{(3)}(\omega)}{8n_0\epsilon_0} |E(\omega)|^2 \quad (1.30)$$

Par ailleurs, l'indice de réfraction non-linéaire n_2 peut être défini par rapport à la moyenne temporelle de l'amplitude du champ électrique réel, c'est à dire :

$$n = n_0 + n_2 \langle \mathcal{E}^2(t) \rangle \quad (1.31)$$

où $\langle \dots \rangle$ désigne une moyenne temporelle. Dans le cas d'une seule vibration monochromatique de pulsation ω , la convention adoptée à la relation 1.25 nous indique que :

$$\mathcal{E}(t) = \frac{1}{2} [E(\omega) \exp(-i\omega t) + E^*(\omega) \exp(i\omega t)] \quad (1.32)$$

La relation 1.31 devient alors :

$$n = n_0 + \frac{n_2}{2} |E(\omega)|^2 \quad (1.33)$$

Identifiant les relations 1.30 et 1.33, le lien entre l'indice de réfraction non linéaire n_2 et la susceptibilité $\chi^{(3)}$ se fait par la relation :

$$n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4n_0\epsilon_0} \quad (1.34)$$

Remarques sur les unités : Notons que tous ces calculs ont été faits avec le système d'unité MKS. Le champ est alors exprimé en V/m . Par conséquent, l'indice de réfraction non-linéaire n_2 est en m^2/V^2 . Enfin, vu notre définition de $\chi^{(3)}$, son unité est le $C \times m/V^3$.

Une autre définition de l'indice de réfraction non-linéaire sera utilisée dans ce travail. Cette définition fait intervenir, non plus la moyenne temporelle du champ électrique au carré, mais la puissance lumineuse traversant une unité de surface perpendiculairement à la direction de propagation du faisceau, couramment désignée sous le terme d'intensité I , exprimée en W/m^2 (il faudrait en toute rigueur utiliser le terme de luminance). Il est plus commode d'utiliser cette valeur qui se déduit directement des mesures expérimentales d'énergie, de répartition spatiale et de durée d'impulsion du faisceau incident. L'indice de réfraction non-linéaire γ , exprimé en m^2/W est maintenant défini par la relation :

$$n = n_0 + \gamma I \quad (1.35)$$

L'intensité telle qu'elle a été définie et telle qu'elle sera déduite des mesures expérimentales des paramètres du faisceau, peut être assimilée à la moyenne temporelle de l'amplitude du vecteur de Poynting réel $\langle \mathcal{S}(t) \rangle$ [27]. Pour une onde plane transverse monochromatique se propageant dans un milieu d'indice linéaire réel n_0 , nous savons que :

$$\langle \mathcal{S}(t) \rangle = \frac{\langle \mathcal{E}^2(t) \rangle}{\eta} \quad \text{avec} \quad \eta = \frac{1}{n_0} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \quad (1.36)$$

où η représente l'impédance du milieu d'indice réel n_0 . Avec notre définition du champ complexe, l'intensité est donc définie dans ce cas par la relation :

$$I = \frac{1}{\eta} \times \frac{|E|^2}{2} \quad (1.37)$$

Remarque : *Tout comme dans le cas de l'approximation monochromatique introduite précédemment, il est également possible de décomposer le faisceau en une superposition d'ondes planes, solutions de l'équation de Helmholtz. La notion de spectre d'ondes planes est introduite et ce spectre est centré autour du nombre d'onde $\sigma_0 = 1/\lambda$. Par propriété de la transformation de Fourier, l'étendue spatiale du faisceau et l'étendue de son spectre d'onde plane sont liés par la relation $\Delta x \Delta \sigma \approx 2\pi$. Le rapport $\Delta \sigma / \sigma_0$ est alors égal à $\lambda / \Delta x$. Ainsi, si l'étendue spatiale du faisceau est très grande devant la longueur d'onde, il sera possible de faire une approximation dite "paraxiale". Dans le cadre de cette approximation, sur laquelle nous reviendrons dans le paragraphe sur l'étude du faisceau incident, la même définition de l'intensité est adoptée, mais cette fois-ci, I et E sont considérés comme des fonctions d'espace qui varient peu sur des distances de l'ordre de la longueur d'onde du faisceau.*

De cette manière, en système d'unité MKS, la correspondance entre γ et n_2 est donnée simplement par la relation :

$$\gamma = \eta \times n_2 = \frac{1}{n_0} \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0}} \times n_2 \approx \frac{120\pi}{n_0} \times n_2 \quad (1.38)$$

L'annexe A rappelle les liens entre $\chi^{(3)}$, n_2 et γ , ainsi que les lois de conversions entre les systèmes MKS et CGS.

1.2.5 Conclusion

Dans ce paragraphe, l'indice de réfraction non-linéaire a été défini à partir de la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre. L'analyse de cette susceptibilité non-linéaire nous a montré qu'en toute rigueur, la susceptibilité effective est la combinaison de 1, 2 ou 3 termes indépendants suivant la configuration expérimentale adoptée. Dans le cas d'une polarisation rectiligne, par exemple, et supposant les trois termes indépendants du tenseur de susceptibilité égaux à une constante χ , les définitions introduites au tableau 1.3 nous indique que la susceptibilité non-linéaire effective vaut 3χ dans le cas d'un seul faisceau, 3χ dans le cas de l'interaction entre un faisceau pompe et un faisceau sonde polarisés parallèlement et χ si leurs polarisations sont perpendiculaires.

Toutefois, les trois termes qui composent la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre dans le cas isotrope sont a priori différents. D'éventuelles relations supplémentaires

pouvant les relier peuvent être introduites et dépendent du mécanisme du phénomène non-linéaire. Dans le cas où il est impossible de négliger un mécanisme devant un autre, la mesure de l'indice de réfraction donne un paramètre global, intégrant toutes les contributions, combinées suivant leur mécanisme d'origine.

En effet, si par exemple l'indice de réfraction non-linéaire est mesuré en configuration pompe-sonde avec deux faisceaux polarisés parallèlement, le tableau 1.3 nous informe que la susceptibilité non-linéaire effective mesurée vaut exactement : $\chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)} + \chi_{xyxy}^{(3)}$. En revanche, lorsqu'un seul faisceau est utilisé, celle-ci vaut : $2 \times \chi_{xxyy}^{(3)} + \chi_{xyyx}^{(3)}$. Or, seule la connaissance du mécanisme microscopique qui est à l'origine de la non-linéarité du troisième ordre permet de connaître les liens entre les trois différents termes $\chi_{xxyy}^{(3)}$, $\chi_{xyyx}^{(3)}$ et $\chi_{xyxy}^{(3)}$. Si plusieurs mécanismes microscopiques entrent en jeu simultanément, mais dans des proportions inconnues, il devient impossible, avec une seule mesure de la variation d'indice dans une configuration donnée, de remonter aux différentes composantes. Dans ces conditions, une mesure effectuée en configuration pompe-sonde, par exemple, ne permet pas de remonter avec précision à la valeur correspondante dans le cas d'un effet Kerr à un seul faisceau.

Nous allons voir qu'a priori, plusieurs mécanismes contribuent à l'indice de réfraction non-linéaire de la silice en régime nanoseconde. Retenons donc que le meilleur moyen d'avoir une mesure précise de l'indice de réfraction non-linéaire menant à une autofocalisation est justement de le mesurer à l'aide d'un montage basée sur l'étude de l'autofocalisation.

1.3 Principaux mécanismes induisant une variation de l'indice de réfraction

1.3.1 Réponse électronique non-résonante

L'application d'un champ électrique sur un atome ou une molécule se traduit par une déformation de son nuage électronique. Lorsque ce champ électrique est celui d'une onde optique de faible amplitude, la réponse du matériau suit l'excitation linéairement en amplitude et à la même fréquence (solution au premier ordre d'un problème d'oscillateur harmonique). Lorsque l'amplitude du champ augmente, cette solution n'est plus valable et la réponse du matériau n'est a priori plus linéaire. Cette source de non-linéarité provient donc de la réponse non-linéaire du nuage électronique à une sollicitation de forte amplitude.

Cette contribution est relativement faible ($\gamma \approx 10^{-20} \text{ m}^2/W$), mais de par sa nature, elle est présente dans tous les matériaux et répond à des fréquences aussi élevées que les fréquences optiques puisque son temps de réponse est inférieur à la femtoseconde. Ce type de non-linéarité peut être estimé théoriquement en utilisant un modèle d'oscillateur anharmonique ou encore une modélisation quantique dans le cas où la fréquence de l'onde incidente est loin des fréquences de résonance du matériau [30, 28]. En particulier, dans le cas de ce mécanisme, la modélisation montre que $\chi_{xxyy}^{(3)} = \chi_{xyyx}^{(3)}$.

Ce type de non-linéarité est intrinsèque au type de matériau choisi. Pour la silice amorphe, la contribution de ce mécanisme à l'indice de réfraction non-linéaire γ est estimée grossièrement entre 3 et $4 \times 10^{-20} \text{ m}^2/W$ dans le visible [31, 6].

1.3.2 Effets thermiques

Dès lors qu'un matériau est absorbant, une partie de la puissance du faisceau est dissipée sous forme de chaleur. En pratique ceci concerne tous les matériaux. L'élévation de température provoque une variation d'indice de réfraction. Lorsqu'un milieu absorbant est perturbé par une impulsion lumineuse de forte puissance, il faut, en toute rigueur, résoudre le problème thermodynamique à l'aide des équations hydrodynamiques linéarisées qui relient les perturbations de vitesse, de pression, de température et de densité du matériau [32]. Ces équations sont alors analysées avec deux sources de perturbations

photo-induites : l'une décrivant l'effet de compression photo-induite par électrostriction et l'autre l'apport énergétique dû à l'absorption de l'énergie lumineuse. Dans ce cas, il faut considérer que la variation d'indice s'exprime sous la forme [33] :

$$\Delta n = \left(\frac{\partial n}{\partial T} \right)_\rho \Delta T + \left(\frac{\partial n}{\partial \rho} \right)_T \Delta \rho \quad (1.39)$$

Dans le cas d'un fluide, la variation de température induit également une variation de densité. Dans un fluide, l'indice de réfraction est généralement plus sensible à une variation de densité qu'à une variation de température. Le premier terme de l'équation précédente peut être négligé. Il reste alors à déterminer la variation de densité induite par deux termes sources différents, l'un décrivant l'effet d'électrostriction et l'autre l'effet de compression thermo-induite [32, 34, 35]. Oubliant pour l'instant le phénomène d'électrostriction qui sera traité dans le paragraphe suivant, nous allons estimer l'élévation de température dans un solide peu absorbant.

La répartition spatio-temporelle de température $T(\vec{r}, t)$ dans le matériau est régie par l'équation de la chaleur (équation de conservation de l'énergie) avec un terme source provenant de la conversion en chaleur d'une partie de l'énergie lumineuse :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} - \kappa \nabla^2 T = \alpha I \quad (1.40)$$

où ρ désigne la densité du milieu, C_p la capacité thermique à pression constante, κ la conductivité thermique, α l'absorption linéique du matériau et $I(\vec{r}, t)$ la répartition spatio-temporelle d'intensité.

Généralement, un terme supplémentaire vient s'ajouter à cette équation pour décrire les effets de la dilatation. Ce terme est abandonné car dans le cas d'un solide, le coefficient de dilatation thermique est de l'ordre de $5 \times 10^{-7} K^{-1}$ [36]. Dans l'équation précédente, le terme source αI représente ici la fraction de puissance du faisceau qui est transformée en chaleur par unité de volume. Le terme $\kappa \nabla^2 T$ représente le terme de diffusion thermique. Le temps de relaxation du phénomène de diffusion thermique est déterminé par la constante de diffusivité thermique $D = \kappa / \rho C_p$. Pour un faisceau de rayon w_0 induisant une lentille d'indice thermique, la chaleur s'évacuera par diffusion de la zone d'autofocalisation en un temps τ_D de l'ordre de [34] :

$$\tau_D \approx \frac{w_0^2}{4D} \quad (1.41)$$

Dans le cas de la silice amorphe, $D \approx 0,85 \times 10^{-6} m^2/s$. Pour un faisceau de $10 \mu m$ de rayon, ceci correspond à $\tau_D \approx 30 \mu s$. Ainsi, il est d'ores et déjà possible de constater qu'il n'y a aucun risque d'accumulation d'impulsion après impulsion de l'effet thermique si le taux de répétition du laser n'est pas trop élevé (typiquement inférieur à une dizaine de kHz).

Dans notre cas, l'impulsion lumineuse dure environ $20 ns$. Le phénomène de diffusion thermique n'a alors pas d'influence significative sur le faisceau si les seuls effets du faisceau sur lui-même nous intéressent. Le terme de diffusion thermique $\kappa \nabla^2 T$ dans l'équation 1.40 peut être abandonné. La répartition spatiale de température suit alors approximativement la répartition d'intensité du faisceau durant le passage de l'impulsion. L'équation 1.40 peut alors être intégrée pour nous fournir l'évolution temporelle de l'élévation de température sur l'axe optique et au point de focalisation, provoquée par le faisceau incident. Il vient :

$$\Delta T(t) = T(t) - T(-\infty) = \frac{\alpha}{\rho C_p} \int_{-\infty}^t I(\vec{0}, t') dt' \quad (1.42)$$

Cette relation permet de voir clairement que les effets thermiques sont cumulatifs et de ce fait, l'élévation de température est, bien entendu, très dépendante de la durée d'impulsion utilisée.

La variation d'indice de réfraction associée à l'élévation de température est déterminée simplement à l'aide du coefficient thermo-optique à densité constante $(\partial n / \partial T)_\rho$ [33], c'est à dire :

$$\Delta n_{thermique} = \left(\frac{\partial n}{\partial T} \right)_\rho \Delta T \quad (1.43)$$

Pour estimer l'influence potentielle des effets thermiques dans le cadre de ce travail, les caractéristiques suivantes de la silice amorphe ont été recueillies [37] :

densité	$\rho \approx 2,2 g/cm^3$
capacité thermique à pression constante ...	$C_p \approx 0,703 J/(g \cdot K)$
coefficient thermo-optique à $589,3 nm$	$\partial n / \partial T \approx 10^{-5} K^{-1}$

Dans le cas de la silice amorphe, la fluence maximale qui peut être utilisée en pratique est de l'ordre de $100 J/cm^2$, c'est à dire quasiment la fluence d'endommagement laser du matériau. Dans le cas de silice amorphe de très bonne qualité optique, comme celle testée,

le coefficient d'absorption linéique peut atteindre des valeurs aussi faibles que 10^{-5} cm^{-1} dans le proche infrarouge. Pour être plus raisonnable, prenons un coefficient d'absorption de 10^{-4} cm^{-1} . Dans ces conditions et à l'aide des équations 1.42 et 1.43, l'élévation d'indice sur l'axe optique du faisceau provoquée par le phénomène thermique a été représentée sur la figure 1.1 pour une impulsion à profil temporel gaussien de demi-largeur à $1/e$ égale à 10 ns et d'intensité crête égale à 5 GW/cm^2 .

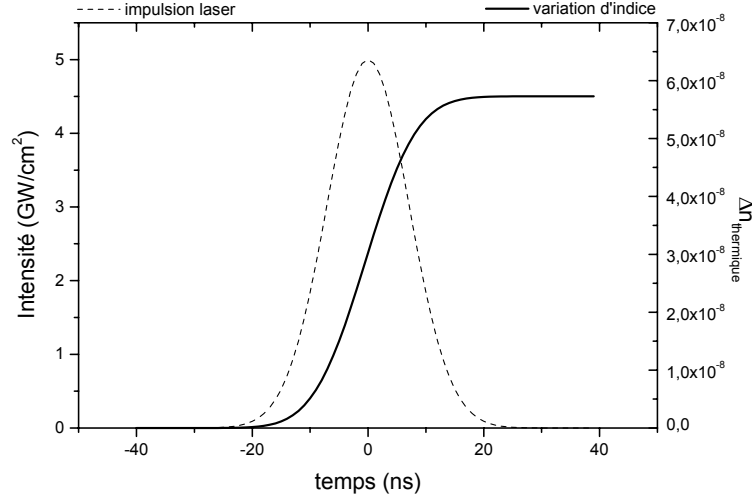


FIG. 1.1 – Variation d'indice thermique sur l'axe optique provoquée par une impulsion nanoseconde

A titre de comparaison, la variation d'indice engendrée par les effets électroniques avec une intensité crête de 5 GW/cm^2 est d'environ $1,5 \times 10^{-6}$. Ainsi, il est peu probable d'observer une contribution notable des effets thermiques dans le cadre de cette étude. Il convient cependant d'être prudent car une absorption de 10^{-3} à 10^{-1} cm^{-1} n'est pas rare dans certains verres (voir annexe E), surtout dès que l'on s'intéresse à des verres non exclusivement composés de silice. Ce coefficient d'absorption peut même rapidement atteindre des valeurs de l'ordre de 1 cm^{-1} dans le proche ultraviolet. Dans ce cas, il n'est pas évident de pouvoir négliger la contribution des effets thermiques.

1.3.3 Electrostriction

Sous l'effet d'un champ électrique, tout matériau diélectrique a tendance à se comprimer. Ce phénomène est connu sous le nom d'**électrostriction**. Le champ électrique a pour effet de polariser les molécules du diélectrique qui vont avoir tendance à s'attirer

entre elles et ainsi comprimer le matériau. Une compression du matériau va induire une variation d'indice de réfraction. Ce phénomène est donc une origine possible de variation d'indice photo-induite et apporte ainsi une contribution supplémentaire à l'indice de réfraction non-linéaire.

Reprenons la relation 1.39 en négligeant maintenant la variation de température. En y introduisant la constante électrostrictive $\gamma_e = \rho_0 (\partial\epsilon/\partial\rho)_{\rho=\rho_0}$, il vient :

$$\Delta n \approx \frac{\gamma_e}{2 \rho_0 n_0} \Delta \rho \quad (1.44)$$

ρ_0 et n_0 représentent respectivement la densité et l'indice linéaire du matériau non perturbé. Δn représente alors la variation d'indice de réfraction provoquée par la variation de densité $\Delta \rho$. La constante électrostrictive peut être évaluée à l'aide de la formule de Lorentz-Lorenz [6] :

$$\gamma_e = \frac{(n_0^2 - 1)(n_0^2 + 2)}{3} \quad (1.45)$$

Il reste maintenant à évaluer la variation de densité induite par électrostriction. La perturbation (en terme de déplacement $\vec{u}(\vec{r}, t)$) induite par un ensemble de contraintes va générer une onde acoustique dans le matériau. Dans le cas d'un solide élastique quelconque, la description de la propagation de cette onde acoustique est un problème complexe [38]. Par exemple, contrairement au cas d'un fluide, deux sortes d'onde acoustique peuvent se propager : une onde de compression (onde longitudinale) et une onde de cisaillement (onde transverse). Par nature, ce dernier type d'onde ne provoquera pas de compression du matériau, il est alors raisonnable d'ignorer son effet sur la variation d'indice. Dans le cas de milieux solides, isotropes et élastiques et en négligeant les ondes de cisaillement, une équation de propagation similaire à celle obtenue dans le cas des liquides peut être établie [39]. Dans ce cas, la variation de densité $\rho(\vec{r}, t)$, induite par électrostriction peut être décrite par l'équation différentielle :

$$\nabla^2 \rho - \frac{1}{v^2} \frac{\partial^2 \rho}{\partial t^2} = \frac{\gamma_e}{2 n_0 c v^2} \nabla^2 I \quad (1.46)$$

v représente la vitesse du son dans le milieu, c la vitesse de la lumière dans le vide et I représente la répartition spatio-temporelle d'intensité dans le matériau. Le terme source issu de la dilatation thermique a été volontairement omis, car dans le cas d'un solide, le coefficient de dilatation thermique et la variation de température sont faibles (voir paragraphe précédent).

Le but ici n'est pas de résoudre le problème de la propagation de l'onde acoustique photo-induite décrite par l'équation 1.46. Si I_0 représente l'intensité du faisceau sur l'axe optique, nous pouvons néanmoins constater que le terme source induit une excitation maximale sur l'axe optique égale à :

$$\Delta\rho_{MAX} = \frac{\gamma_e I_0}{2n_0 c v^2} \quad (1.47)$$

A l'aide de la relation 1.44, cette variation de densité correspond à une variation d'indice de la forme :

$$\Delta n = \frac{\gamma_e^2}{4n_0^2 c \rho_0 v^2} \times I_0 \quad (1.48)$$

Ceci correspond à un indice de réfraction non-linéaire γ de $1,2 \times 10^{-20} m^2/W$ avec, pour la silice amorphe, $v \approx 5970 m/s$.

Par ailleurs, la lentille d'indice induite par un faisceau gaussien de rayon $w_0 = 10 \mu m$ s'établit en un temps $\tau \approx w_0/v$, c'est à dire $\approx 2 ns$.

Dans la silice, les contributions issues des mécanismes électroniques et de l'électrostriction sont donc du même ordre de grandeur. Par ailleurs, le temps de réponse du second phénomène est plus élevé mais reste du même ordre de grandeur que la largeur temporelle des impulsions utilisées (de l'ordre de $20 ns$). La contribution de l'électrostriction à l'indice de réfraction non-linéaire de la silice amorphe n'est donc pas négligeable en toute rigueur. En outre, le temps de réponse du phénomène acoustique n'est pas complètement négligeable devant la largeur des impulsions. La contribution à la variation d'indice et à l'autofocalisation de l'électrostriction est donc a priori dépendante de la largeur des impulsions et de l'étendue spatiale du faisceau incident. Enfin, il faut rappeler que pour un matériau absorbant, il serait également nécessaire de considérer, en plus de l'électrostriction, une variation de densité induite thermiquement dans le matériau.

Un fluide est moins dense et beaucoup plus compressible. Ceci a pour effet de réduire considérablement le produit $\rho_0 v^2$ dans l'expression 1.48. La variation d'indice induite par électrostriction est alors beaucoup plus importante. En revanche, pour la plupart des solides, la contribution de l'électrostriction évaluée ici reste sensiblement la même. Ainsi, dans la plupart des solides qui ont des propriétés non-linéaires importantes, dues à des propriétés électroniques particulières, l'influence de l'électrostriction est négligeable. Dans notre cas précis, celui de la silice et, plus généralement, des solides possédant un faible indice de réfraction non-linéaire, l'électrostriction doit être prise en compte parce que sa

contribution est du même ordre de grandeur que les contributions électroniques. Enfin, on peut noter qu'un tel mécanisme mène à une valeur nulle du terme $\chi_{xyyx}^{(3)}$, c'est à dire que l'électrostriction est un mécanisme isotrope qui n'a pas d'effet sur la polarisation du champ électrique de l'onde incidente.

1.3.4 Réorientation moléculaire

Dans le cas des liquides ou des gaz, la réorientation moléculaire est un autre mécanisme possible de variation d'indice de réfraction photo-induite. Sous l'effet d'un champ électrique, des molécules polaires ont tendance à aligner leur moment dipolaire sur les lignes de champ, provoquant une légère variation d'indice de réfraction. Ce mécanisme peut donner lieu à de très fortes non-linéarités, comme dans le cas de la molécule de CS_2 . Ce liquide est d'ailleurs beaucoup utilisé en optique non-linéaire expérimentale et sert souvent de matériau non-linéaire de référence. Son indice de réfraction non-linéaire en régime picoseconde est d'environ $3 \times 10^{-18} m^2/W$ à $1064 nm$ [40], soit 100 fois plus que la silice amorphe. De manière générale, un grand nombre de liquides organiques possèdent un fort indice de réfraction non-linéaire, provenant majoritairement de ce type de mécanisme. Par ailleurs, le temps de réponse du mécanisme de réorientation moléculaire est très bref, de l'ordre de $10^{-12} s$.

1.4 Méthodes de mesure de l'indice de réfraction non-linéaire

Dès les années 60, plusieurs méthodes ont été développées pour étudier les non-linéarités cubiques. La diversité des interactions qui peuvent avoir lieu au sein d'un matériau montrant des non-linéarités cubiques (voir partie 1.2) offre un très grand nombre de méthodes de mesure possibles a priori. Cependant, il faut être prudent car chaque méthode permet de mesurer une ou plusieurs composantes du tenseur de susceptibilité et n'est pas forcément sensible aux mêmes mécanismes. Parmi les méthodes adaptées à la mesure des non-linéarités induisant une variation d'indice de réfraction, nous allons décrire les trois principales approches de mesure :

- ✓ Mélange à quatre ondes
- ✓ Méthodes interférométriques
- ✓ Etude de distorsion de faisceau

1.4.1 Mélange à quatre ondes

Le mélange à quatre ondes fut la première méthode utilisée pour estimer l'indice de réfraction-non linéaire avec précision. C'est la méthode la plus directe, et la seule disponible pour étudier avec précision tous les termes du tenseur de susceptibilité non-linéaire du troisième ordre. Cette méthode est basée sur l'étude de l'interaction entre plusieurs faisceaux au sein d'un matériau possédant une non-linéarité cubique. Les effets non-linéaires décrits par la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre ont été étudiés expérimentalement pour la première fois par Maker et Terhune dans plusieurs cristaux et à l'aide de plusieurs configurations de mesures [41]. Les configurations de mesures employées reposaient sur le mélange de trois faisceaux au sein d'un cristal non-linéaire, puis sur une étude spectrale de la fraction de lumière convertie dans une autre longueur d'onde par effet non-linéaire du troisième ordre. En effet, nous avons vu, dans la partie 1.2, que dans le cas d'une interaction entre trois ondes incidentes de pulsations différentes ω_1 , ω_2 et ω_3 , il est possible d'obtenir au sein de la polarisation non-linéaire du troisième ordre toutes les combinaisons possibles entre les trois champs et leurs conjugués, ce qui permet la génération d'ondes aux pulsations $\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3$, qu'il est alors possible d'isoler à l'aide d'un monochromateur. En outre, la connaissance des symétries du cristal permet d'éliminer certains termes du tenseur de susceptibilité et de trouver éventuellement des relations entre les termes restants. Par exemple, pour un cristal à symétrie cubique, le tenseur de susceptibilité du troisième ordre possède 21 éléments non-nuls sur les 81 qui composent le tenseur, dont au moins 7 sont indépendants [28]. Dans ces conditions, une étude spectrométrique de la lumière générée par les interactions au sein du cristal dans plusieurs configurations différentes permet de déterminer plusieurs, voire tous les éléments du tenseur de susceptibilité [41].

En particulier, dans le cas de l'étude de variation d'indice de réfraction dans une configuration à un seul faisceau, le terme de susceptibilité qui nous intéresse est le terme :

$$\chi^{(3)}(\omega, \omega, \omega, -\omega)$$

Dans ce cas, la méthode de mélange à quatre ondes la plus adaptée à l'étude de ce terme de susceptibilité est une méthode de mélange dégénéré à quatre ondes, c'est à dire un mélange à quatre ondes dans lequel deux des ondes impliquées ont la même pulsation [42]. Dans une telle configuration (la configuration expérimentale la plus simple est schématisée à la figure 1.2), deux faisceaux de pulsation ω_1 viennent interagir avec

un troisième faisceau de fréquence $\omega_2 = \omega_1 + \Delta$. Parmi les termes de la polarisation du troisième ordre, se trouve en particulier un terme de la forme :

$$P^{(3)}(2\omega_1 - \omega_2) = 3\chi^{(3)}(2\omega_1 - \omega_2, \omega_1, \omega_1, -\omega_2) E^2(\omega_1)[E(\omega_2)]^* \quad (1.49)$$

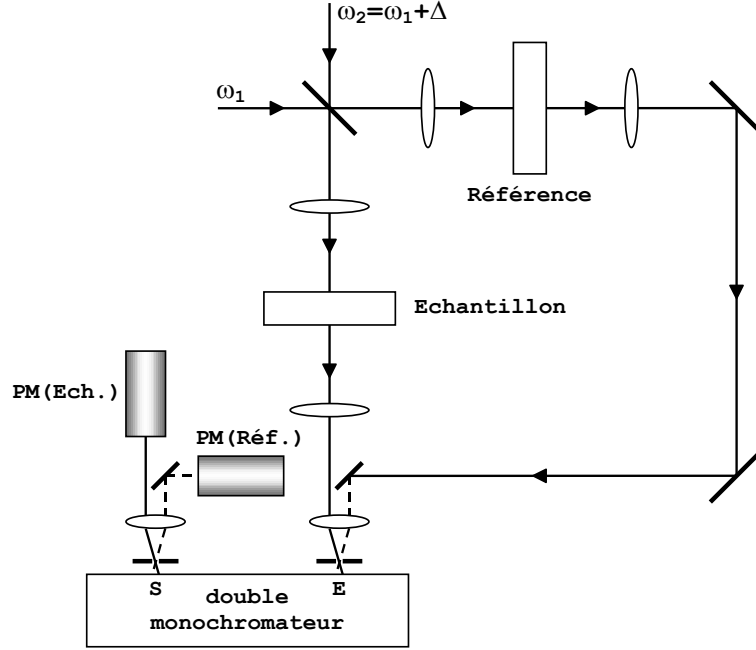


FIG. 1.2 – Configuration expérimentale de mélange dégénéré à 4 ondes [43]. Notons que dans cette configuration particulière, un seul faisceau à la pulsation ω_1 est utilisé. Le champ électrique à la pulsation ω_1 interviendra deux fois au sein de la susceptibilité non-linéaire. Deux vibrations de pulsations très proches ω_1 et $\omega_2 = \omega_1 + \Delta$ sont donc superposées à l'aide d'une lame séparatrice. Ces deux ondes viennent interagir au sein de l'échantillon et d'un matériau de référence. Un monochromateur permet d'isoler l'onde générée à la pulsation $\omega_1 - \Delta$ par effet non-linéaire.

Ce terme source donne naissance à une vibration de pulsation $2\omega_1 - \omega_2$ qui peut être étudiée séparément à l'aide d'un monochromateur. L'intensité I_3 de l'onde émise à cette pulsation est alors de la forme :

$$I_3 = K \times |\chi^{(3)}(2\omega_1 - \omega_2)|^2 \times I_1^2 I_2 l^2$$

I_1 et I_2 représentent les intensités des faisceaux à ω_1 et ω_2 , et l l'épaisseur de l'échantillon. Malheureusement, il est difficile de connaître avec précision la valeur du coefficient K qui dépend des conditions expérimentales. Il est alors indispensable d'utiliser

une voie de référence identique, comportant un matériau non-linéaire connu pour se débarrasser de ce coefficient. L'inconvénient majeur de cette méthode est donc la nécessité d'utiliser un matériau de référence et elle ne permet donc pas une mesure absolue directe. En revanche, cette méthode permet une mesure relative précise. En outre, il faut noter que les méthodes de mélange à quatre ondes ne sont sensibles qu'aux non-linéarités répondant à des excitations temporelles très rapides ($< 10^{-13}$ s).

D'autre part, pour une estimation plus exacte de la susceptibilité $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_1, \omega_1, -\omega_1)$, il faudrait utiliser des pulsations très proches. Or, lorsque $|\Delta|/(2\pi c) = |\omega_2 - \omega_1|/(2\pi c) < 1000 \text{ cm}^{-1}$, la susceptibilité du matériau de référence peut dévier considérablement car des contributions supplémentaires induites par phonons peuvent intervenir [42]. En effet, lorsque les pulsations ω_1 et ω_2 sont strictement identiques, la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre $\chi^{(3)}(\omega_1, \omega_1, \omega_1, -\omega_1)$ provient majoritairement de mécanismes électroniques. En revanche, lorsque deux ondes de pulsations légèrement différentes interagissent au sein du matériau non-linéaire, il est possible d'exciter des résonances Raman, c'est à dire des transitions vibrationnelles du matériau testé. Cette contribution nucléaire vient s'ajouter alors à la contribution électronique. Or, le décalage en fréquence induit par la diffusion Raman est, par exemple, d'environ 500 cm^{-1} pour un solide tel que la silice, et d'environ 1000 cm^{-1} pour un liquide tel que le toluène [6].

Il est alors essentiel de bien choisir et de bien connaître le matériau à tester, ainsi que le matériau de référence. Des travaux [43] ont malgré tout pu être effectués avec $|\Delta|/(2\pi c) \approx 60 \text{ cm}^{-1}$ grâce à une estimation quantitative critique de ce phénomène, qui, dans ce cas précis, induisait une contribution négligeable.

Au niveau expérimental, il faut noter que la mise en place de ce type de méthode est assez complexe. En effet, sa réalisation nécessite l'alignement précis d'au moins deux faisceaux par voie de mesure (voie principale et voie de référence), ainsi que l'utilisation d'un, voire de deux monochromateurs de grande résolution. L'obtention de deux faisceaux de pulsations légèrement différentes n'est pas non plus aisée. En outre, comme nous l'avons vu, ce type de méthode ne permet de mesurer exactement le terme de susceptibilité décrivant l'effet Kerr à un seul faisceau. Enfin, ce principe de mesure n'est pas sensible aux mécanismes plus lents comme l'électrostriction et les effets thermiques.

1.4.2 Méthodes interférométriques

Une autre méthode pour mesurer plus directement la variation d'indice photo-induite dans un échantillon non-linéaire est de faire de l'interférométrie. Ce type de méthode implique de diviser le faisceau incident en deux faisceaux afin de les faire interférer dans une configuration de type Michelson [44, 45] ou Mach-Zender [46], par exemple. Ce type de méthode est, par nature, sensible à toute variation d'indice photo-induite, contrairement aux méthodes basées sur le mélange à 4 ondes. Par ailleurs, une détermination absolue de l'indice de réfraction est possible, si les caractéristiques spatio-temporelles du faisceau incident sont étudiées.

Configuration à un faisceau

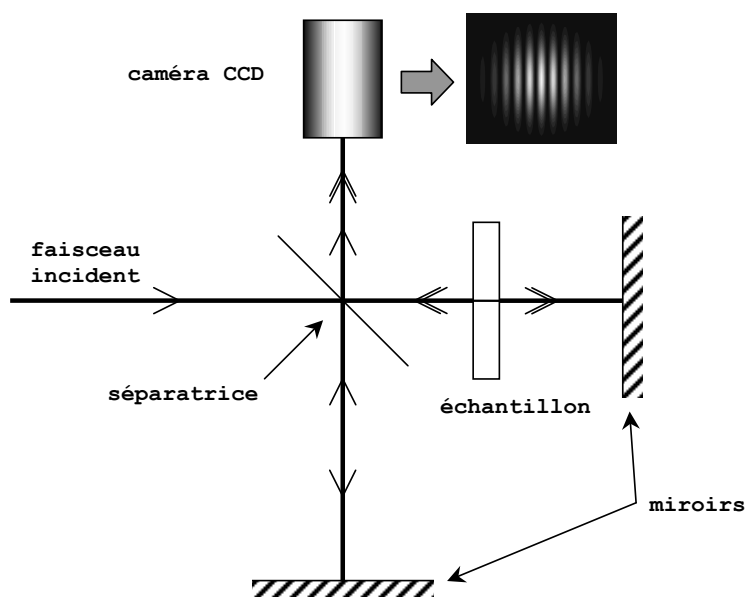


FIG. 1.3 – Montage interférométrique de type Michelson réglé en franges parallèles

Une configuration de type Michelson à un seul faisceau est représentée à la figure 1.3. Dans une telle configuration, les franges d'interférences sont imagées sur une caméra CCD. Il est ensuite nécessaire d'augmenter graduellement l'intensité du faisceau incident jusqu'à observer un déplacement de franges d'interférence dû à la variation d'indice photo-induite dans le matériau. Cette méthode permet de déceler des variations de chemin optique de l'ordre de la longueur d'onde. Pour déterminer sans ambiguïté le signe de l'indice de

réfraction non-linéaire, il est nécessaire de calibrer le montage, afin de relier le sens de déplacement des franges avec le signe de la variation d'indice [45].

Cette configuration à un faisceau est assez difficile à mettre en oeuvre. En effet, le choix des éléments optiques et l'alignement d'un tel montage interférométrique est rendu difficile puisqu'un laser impulsionnel doit être utilisé. Or, ce genre de laser n'est pas toujours très stable en puissance impulsion après impulsion et peut présenter un fort dépointé. En outre, intensité et fluence peuvent être très élevées, ce qui nécessite l'emploi de miroirs et de séparatrices très résistants au flux. Une configuration pompe-sonde peut être plus commode et apporte de nombreuses autres possibilités. Plusieurs cas de figures peuvent alors être envisagés.

Cas de deux faisceaux distincts

Dans ce cas, le faisceau pompe, issu d'un laser impulsionnel induit la variation d'indice dans l'échantillon. L'échantillon est alors placé sur un des bras d'un montage interférométrique mis en place à l'aide d'un autre laser (un laser continu, par exemple, pour simplifier la mise en place du montage et en assurer la stabilité). Il est alors nécessaire de superposer et de séparer les deux faisceaux à l'aide de dichroïques si leurs longueurs d'ondes sont différentes, ou d'attaquer l'échantillon sous des angles différents. Toutefois, dans ce cas de figure, la susceptibilité non-linéaire mesurée caractérise l'effet d'un faisceau pompe à une pulsation ω_1 sur un faisceau sonde à une pulsation ω_2 . Le terme de susceptibilité non-linéaire n'est pas celui qui décrit l'effet Kerr à un faisceau.

Cas d'un seul faisceau séparé en un faisceau sonde et un faisceau pompe

Pour éviter le problème sus-mentionné, il est préférable d'utiliser un seul laser impulsionnel dont on prélève une partie pour constituer le faisceau sonde. Ce cas de figure a été représenté à la figure 1.4 en s'inspirant du montage de la référence [47]. Le faisceau sonde, de faible intensité, permet de constituer un montage interférométrique (de type Mach-Zender dans l'exemple choisi). L'échantillon est placé sur un des bras du montage interférométrique. Le faisceau pompe est focalisé dans l'échantillon, permettant ainsi d'induire la variation d'indice. Dans ce cas, seul un angle d'attaque différent sur l'échantillon permet de séparer les deux faisceaux. En effet, l'utilisation de deux faisceaux pompe et sonde confondus nécessiterait de croiser leurs polarisations afin de pouvoir les séparer. Or,

dans une telle configuration, le terme de susceptibilité mesuré est uniquement lié à $\chi_{xyxy}^{(3)}$ (d'après le tableau 1.3).

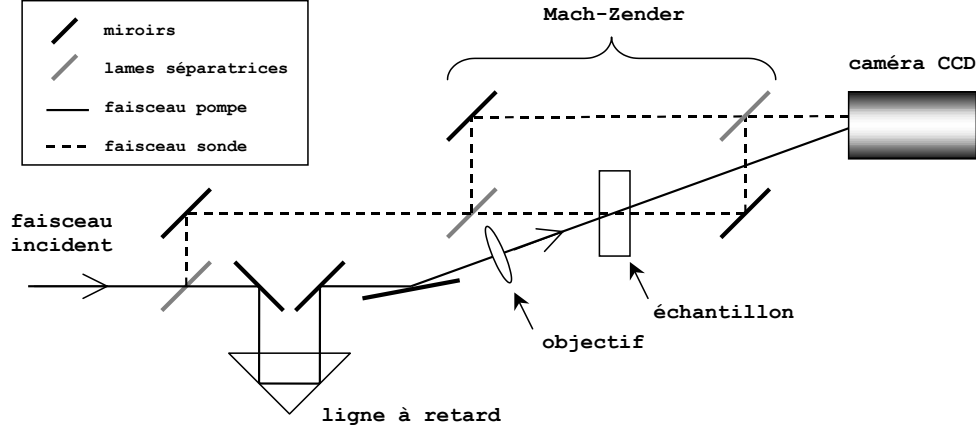


FIG. 1.4 – Montage interférométrique de type Mach-Zender en configuration pompe-sonde

La configuration expérimentale décrite à la figure 1.4 possède deux particularités intéressantes que la configuration pompe-sonde permet. D'une part, le profil spatial du faisceau pompe peut être imagé sur la caméra (à l'aide d'une lentille, non représentée). Ainsi, ceci permet de corrélérer la répartition spatiale du faisceau pompe et la répartition spatiale de la variation d'indice. Une telle résolution spatiale de la variation d'indice est intéressante, par exemple, pour étudier un éventuel élargissement spatial de la variation d'indice, dû à un phénomène de diffusion thermique. D'autre part, si la durée d'impulsion est inférieure à quelques centaines de picosecondes, l'impulsion pompe peut être avancée ou retardée par rapport à l'impulsion sonde, à l'aide de la ligne à retard représentée sur la figure 1.4. Ceci permet d'avoir une mesure résolue en temps, grâce à laquelle des mécanismes de temps de réponse supérieurs à la durée d'impulsion peuvent être étudiés. Pour des impulsions de durée supérieure à quelques nanosecondes, on comprend que ce genre d'amélioration n'est techniquement pas réalisable, puisqu'il faut allonger le chemin optique de 30 cm pour décaler les impulsions d'une seule nanoseconde.

En résumé, les méthodes interférométriques sont donc particulièrement intéressantes pour leur sensibilité et la possibilité d'une mesure de l'indice de réfraction non-linéaire absolue et incluant tous les mécanismes. La possibilité d'une mesure résolue en temps et spatialement est également très intéressante. En revanche, ce type de montage interféro-

métrique reste assez complexe à mettre en place dans sa configuration pompe-sonde. En outre, ces méthodes nécessitent un dispositif d'imagerie assez complexe et performant. La caméra doit avoir une grande résolution et peu de bruit de fond. Dans ces conditions, et à l'aide d'un traitement d'image très fin de la déformation des franges d'interférence, ce genre de méthode permet de détecter des variations de chemin optique bien inférieures à la longueur d'onde.

1.4.3 Etude de distorsion de faisceau

Ce type de mesure de l'indice de réfraction non-linéaire regroupe en fait plusieurs méthodes dont l'approche est identique : étudier la déformation d'un faisceau de forte puissance après son passage dans un milieu non-linéaire. Seule la façon d'analyser cette déformation change d'une méthode à l'autre. Ce type de méthode est la façon la plus simple et la plus directe d'étudier le phénomène d'autofocalisation mais nécessite une bonne connaissance du faisceau incident, une analyse précise du phénomène d'autofocalisation et ne présente pas toujours une sensibilité aussi bonne que les méthodes précédemment décrites.

Autofocalisation

Si un matériau diélectrique est soumis à une répartition d'intensité lumineuse non uniforme $I(\vec{r})$ suffisamment élevée, l'indice de réfraction n du matériau n'est plus uniformément égal à l'indice de réfraction linéaire n_0 mais dépend de la position \vec{r} de la manière suivante :

$$n(\vec{r}) = n_0 + \gamma I(\vec{r}) \quad (1.50)$$

Considérant une répartition d'intensité gaussienne, par exemple, on constate l'apparition d'une lentille d'indice photo-induite dans l'échantillon non-linéaire. Ce phénomène est illustré à la figure 1.5 dans le cas où $\gamma > 0$. En terme de chemin optique, tout se passe comme si l'échantillon, d'épaisseur finie L , était élargi légèrement au niveau de l'axe optique du faisceau.

Si l'échantillon est suffisamment épais, cette lentille d'indice va focaliser le faisceau un peu plus, concentrant sa puissance sur une zone plus réduite autour de l'axe optique. La lentille d'indice photo-induite par cette nouvelle répartition de puissance sera ainsi un

peu plus "convergente" et ainsi de suite jusqu'à atteindre des intensités particulièrement élevées pouvant mener à l'endommagement du matériau. Ce phénomène est connu sous le nom d'autofocalisation³.

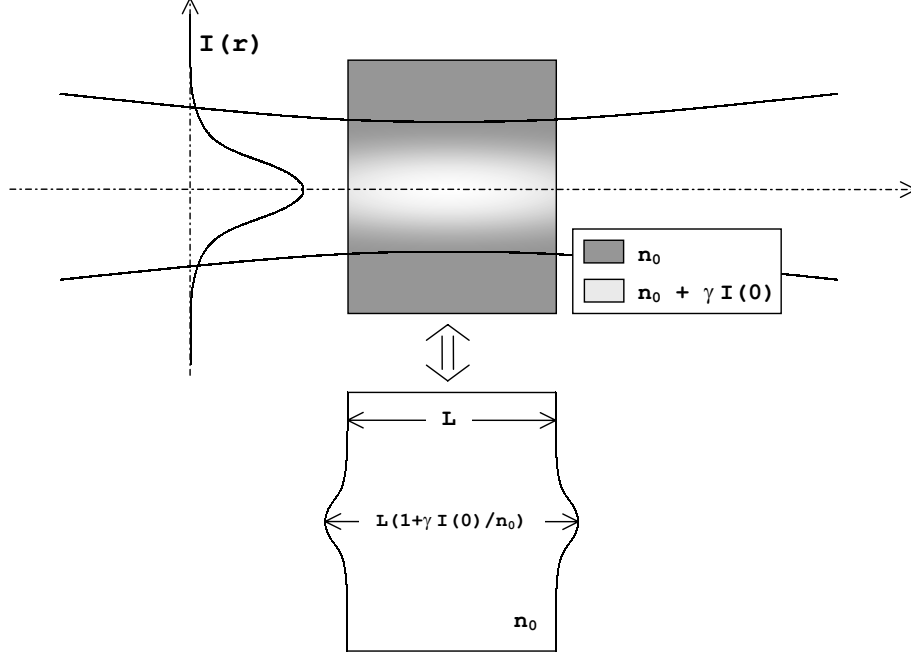


FIG. 1.5 – Variation d'indice photo-induite dans un échantillon d'épaisseur finie L , illuminé par un faisceau gaussien et déformation géométrique équivalente (en terme de chemin optique)

Dans le cas général, la répartition d'indice non-uniforme engendrée par un faisceau laser intense dans un matériau perturbe la propagation du faisceau, provoquant une autofocalisation du faisceau (ou encore une défocalisation). Traditionnellement, deux types d'autofocalisation sont distinguées : l'autofocalisation globale du faisceau, engendrant une déformation du faisceau tout entier et concentrant toute sa puissance sur une surface de plus en plus petite et l'autofocalisation dite "à petite échelle", qui amplifie les éventuelles sur-intensités du faisceau jusqu'à l'éclater en plusieurs filaments. Dans le pire des cas, ces deux phénomènes peuvent amorcer un endommagement du matériau et dans le meilleur des cas, perturber plus ou moins le front d'onde du faisceau. L'autofocalisation est tout naturellement limitée par la diffraction du faisceau. Considérant un faisceau gaussien

³Une défocalisation photo-induite est également possible si l'indice de réfraction non-linéaire est négatif, mais elle ne peut évidemment pas mener à un endommagement du matériau

de longueur d'onde λ et de puissance totale P se propageant dans un matériau d'indice linéaire n_0 et d'indice non-linéaire γ , on montre que le phénomène d'autofocalisation compense exactement la diffraction du faisceau pour une puissance critique P_c de la forme (voir annexe B) :

$$P_c = 0,273 \times \frac{\pi (1,22\lambda)^2}{8 n_0 \gamma} \quad (1.51)$$

Au-delà de cette puissance critique, le faisceau a tendance à se focaliser de plus en plus. Si la distance parcourue dans le matériau est assez longue, l'intensité au centre du faisceau peut atteindre des valeurs suffisamment élevées pour amorcer l'endommagement du matériau.

Estimation de l'indice de réfraction non-linéaire à partir de la puissance critique

Parmi les toutes premières méthodes utilisées pour estimer l'indice de réfraction non-linéaire, l'étude du seuil d'endommagement peut permettre d'estimer la puissance critique [48, 49] et donc la valeur de l'indice de réfraction non-linéaire. Ce genre de mesure permet d'avoir une estimation globale de l'indice de réfraction non-linéaire si le processus d'endommagement est majoritairement amorcé par le phénomène d'autofocalisation (ceci est une bonne approximation pour des impulsions de durée inférieure à quelques dizaines de picosecondes ou des faisceaux particulièrement larges et donc de puissance totale très importante). En revanche, cette méthode a comme défaut d'être destructrice et elle n'a pas une grande sensibilité, a priori. Cette méthode est encore utilisée aujourd'hui à des fins métrologiques [50]. Pour être sensible, cette méthode nécessite alors une analyse fine du phénomène d'autofocalisation et une métrologie précise et contrôlée de l'endommagement laser.

Limitation optique et étude de la réfraction non-linéaire par distorsion de faisceau

Pour des régimes de puissance au dessous de la puissance critique, le phénomène d'autofocalisation a suscité l'intérêt pour la réalisation de systèmes permettant de limiter automatiquement la puissance d'un faisceau laser, afin, par exemple, de protéger des optiques fragiles. Ce genre de dispositif limiteur possède un grand intérêt également dans la conception de lasers à impulsions ultra-courtes, pour éliminer automatiquement certains

modes dans la cavité laser. Plusieurs configurations permettant la limitation optique sont illustrées à la figure 1.6.

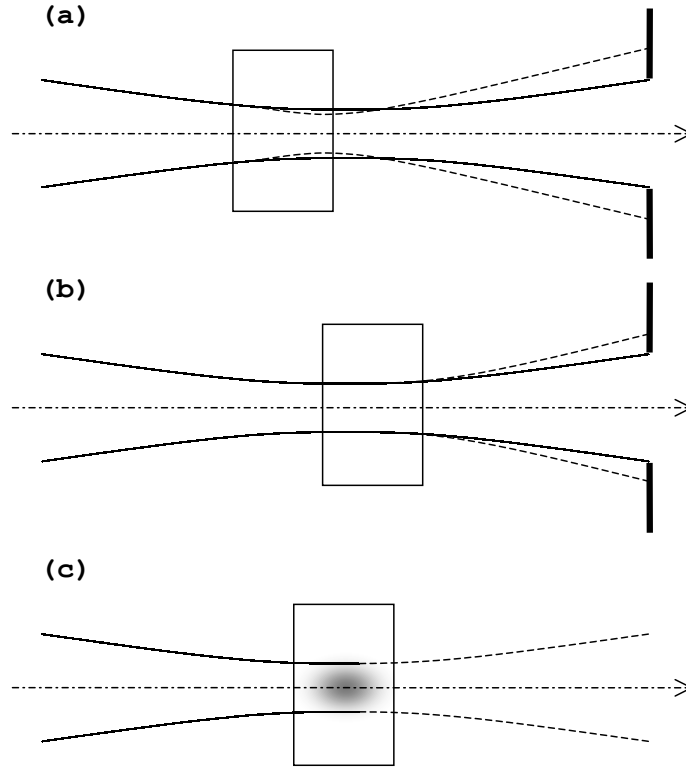


FIG. 1.6 – Principales configurations de limiteurs optiques : (a) Cas d'une autofocalisation positive : l'échantillon est placé avant le point de focalisation. La lentille convergente photo-induite provoque un élargissement de faisceau en champ lointain et la fraction de puissance superflue est stoppée par un diaphragme. (b) Cas d'une autofocalisation négative : l'échantillon est placé après le point de focalisation. La lentille divergente photo-induite ainsi placée provoque également un élargissement de faisceau en champ lointain. (c) Cas d'une absorption non-linéaire. La puissance est directement réduite lors du passage dans l'échantillon.

Une étude poussée de ces systèmes a permis de mettre en place les premières méthodes de mesure d'indice de réfraction non-linéaire par distorsion de faisceau. Une telle configuration expérimentale est particulièrement simple et la principale difficulté est d'utiliser des modélisations adaptées au phénomène d'autofocalisation et d'absorption non-linéaire dans cette configuration expérimentale [51, 52, 53].

Dans ces conditions, l'indice de réfraction d'un échantillon fin de matériau fortement non-linéaire (InSb) a pu être estimé [51] en prédisant l'allure du faisceau perturbé en champ lointain. Cette méthode ne présentait pourtant pas encore de sensibilité suffisante pour mesurer de faibles déphasages non-linéaires avec précision. Toutefois, d'autres travaux similaires [52] ont permis de mesurer une variation de chemin optique de l'ordre de $\lambda/2$ dans du CS_2 , se rapprochant ainsi de la sensibilité des méthodes interférométriques.

C'est toujours dans ce contexte que Sheik-Bahae et ses collaborateurs [40] ont mis en place la méthode de Z-scan, qui sera largement décrite dans cette thèse. Cette méthode est également basée sur l'étude de la déformation du faisceau. Plus particulièrement, la méthode de Z-scan consiste à déplacer un échantillon le long de l'axe optique autour du point de focalisation et d'observer en champ lointain l'évolution de la déformation du faisceau. Cette méthode permet d'obtenir une sensibilité sur la variation de chemin optique bien inférieure à λ ($\lambda/300$ dans l'étude de Sheik-Bahae). Ce qui en fait une des méthodes les plus simples et les plus sensibles de mesure de l'indice de réfraction non-linéaire.

1.5 Conclusion

A partir du formalisme des équations de Maxwell et des relations constitutives de la matière, l'indice de réfraction non-linéaire a été introduit et relié à la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre, dans le cas de milieux isotropes centrosymétriques. En toute rigueur, l'indice de réfraction non-linéaire est lié à une susceptibilité non-linéaire du troisième ordre effective, issue d'une combinaison des termes indépendants du tenseur de susceptibilité non-linéaire du troisième ordre. Nous avons vu également que, suivant la configuration expérimentale adoptée, la susceptibilité effective peut provenir d'une combinaison différente de ces termes.

Dans le régime nanoseconde et dans les verres optiques, plusieurs mécanismes peuvent mener à une variation d'indice de réfraction simultanément (effets électroniques, électrostriction et effets thermiques). Ceci rend alors impossible toute réduction de paramètre au sein de la susceptibilité non-linéaire effective.

Ainsi, seule une méthode basée sur l'étude de l'autofocalisation permet réellement d'estimer l'indice de réfraction non-linéaire responsable de l'autofocalisation du faisceau. Parmi les différentes méthodes de mesure de la susceptibilité non-linéaire du troisième ordre ou de l'indice de réfraction non-linéaire, la méthode de Z-scan semble particulièrement bien adaptée à notre cadre d'étude. En outre, cette méthode offre, a priori, une grande simplicité de mise en oeuvre et une grande sensibilité. Enfin, une mesure absolue de l'indice de réfraction non-linéaire est possible.

Chapitre 2

La méthode de Z-scan : principe et état de l'art

Le chapitre précédent a permis de définir l'indice de réfraction non-linéaire, de connaître les différents mécanismes qui peuvent mener à une variation d'indice photo-induite, et d'introduire les différents moyens d'en évaluer l'amplitude. Le but poursuivi dans ce mémoire est de mesurer avec le plus de précision possible la valeur absolue de faibles indices de réfraction non-linéaire tenant compte de tous les mécanismes issus d'une action du faisceau sur lui-même. L'utilisation d'une méthode à un faisceau semble la manière la plus directe de mesurer ceci. Par ailleurs, une méthode basée sur la déformation photo-induite du faisceau est, par nature, sensible à tout type de variation d'indice photo-induite, ce qui a orienté notre choix sur la méthode de Z-scan. Afin de constituer un montage expérimental adapté à notre but précis et de mettre en place une modélisation limitant le risque d'erreur sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire, il est nécessaire de se forger une parfaite connaissance de la méthode de Z-scan, c'est à dire une bonne connaissance de son principe de fonctionnement, de ses avantages, mais bien plus encore, de ses limites. Ce chapitre a donc pour but de présenter en détail la méthode de Z-scan en s'appuyant sur les études expérimentales et théoriques de la littérature, ainsi que sur notre propre expérience du sujet.

2.1 Introduction

La méthode de "Z-scan", développée pour la première fois par M. Sheik-Bahae et al. en 1990 [40] a été depuis très utilisée pour la mesure de l'indice de réfraction et de l'absorption non-linéaires. Dans le contexte de l'étude de systèmes limiteurs optiques, nous avons vu dans le chapitre précédent que l'utilisation d'un seul faisceau pour étudier la réfraction non-linéaire s'est montrée concluante, ce qui simplifie considérablement le montage expérimental par rapport aux autres méthodes de mesure de l'indice de réfraction non-linéaire (voir paragraphe 1.4.3).

Cependant, une mesure directe de la déformation du faisceau reste peu sensible et nécessite de connaître le profil spatial complet du faisceau en champ lointain, ceci en présence, et en l'absence d'effets non-linéaires. L'idée de la méthode de Z-scan est d'utiliser un faisceau focalisé et de ne s'intéresser qu'à l'évolution en champ lointain de l'intensité du faisceau sur l'axe optique, lorsque l'échantillon se déplace le long de celui-ci. Au voisinage du point de focalisation, l'intensité du faisceau sur l'axe optique évolue rapidement, induisant une lentille d'indice plus ou moins prononcée. Ce balayage longitudinal permet donc implicitement de faire varier l'intensité dans l'échantillon. Ceci permet d'induire une variation d'indice dépendante de la position longitudinale de l'échantillon.

Dans ce chapitre, le principe de base de la méthode sera d'abord exposé et quelques caractéristiques importantes d'une telle méthode seront décrites. Puis, nous nous attacherons sur les différents modèles analytiques développés pour simuler le signal obtenu dans une telle configuration. Enfin, nous passerons rapidement en revue les principaux travaux expérimentaux et les matériaux non-linéaires typiquement utilisés dans les études de Z-scan.

2.2 Montage expérimental et généralités

2.2.1 Principe

Le principe de base de la méthode de Z-scan est donc de déplacer longitudinalement un échantillon à faces parallèles le long de l'axe optique d'un faisceau focalisé. Ce balayage va induire un changement d'indice dépendant de la position, et donc une défocalisation du faisceau dépendante de la position de l'échantillon. Il reste alors à mesurer cette défo-

calisation du faisceau. L'idée de la méthode de Z-scan, qui est la plus simple pour mesurer une défocalisation, est de mesurer la puissance transmise par un diaphragme centré sur l'axe optique du faisceau en champ lointain. En effet, la défocalisation du faisceau va provoquer une augmentation ou une diminution de sa divergence qui se traduira, dans un plan fixe, par une diminution ou une augmentation d'intensité sur l'axe optique.

La figure 2.1 illustre l'évolution de la puissance transmise par le diaphragme lors du balayage longitudinal de l'échantillon. La lentille d'indice photo-induite dans l'échantillon (voir paragraphe 1.4.3) devient de plus en plus prononcée lorsque celui-ci s'approche du point de focalisation, provoquant une défocalisation du faisceau de plus en plus visible. En revanche, aucune déformation du faisceau n'est observée lorsque l'échantillon se trouve dans une zone où l'intensité maximale du faisceau est trop faible pour engendrer une variation d'indice notable.

La figure 2.1 représente le cas d'une variation d'indice positive ($\gamma > 0$), sans phénomène d'absorption linéaire ou non-linéaire. Lorsque l'échantillon est placé avant le point de focalisation, la lentille d'indice a pour effet d'accroître légèrement la divergence du faisceau, ce qui provoque une diminution du flux traversant le diaphragme placé devant le détecteur. En revanche, un échantillon placé après le point de focalisation a tendance à réduire la divergence du faisceau, ce qui provoque alors une augmentation du flux. Lorsque l'échantillon se trouve au point de focalisation, l'intensité est maximum : c'est le point de mesure pour lequel la variation d'indice dans l'échantillon est la plus élevée. En revanche, pour ce point de mesure, aucune déformation n'est observée en champ lointain, la puissance transmise retrouve son niveau original. En configuration de Z-scan à un faisceau, c'est malheureusement lorsque la variation d'indice est la plus forte que la méthode est la moins sensible.

Notons que dans le cas d'une variation d'indice négative ($\gamma < 0$), la puissance transmise représentée à la figure 2.1 croît puis décroît lorsque l'échantillon s'éloigne de l'objectif. Ainsi, par une simple observation de la variation de puissance transmise, cette méthode permet de déterminer sans aucune ambiguïté le signe de l'indice de réfraction non-linéaire.

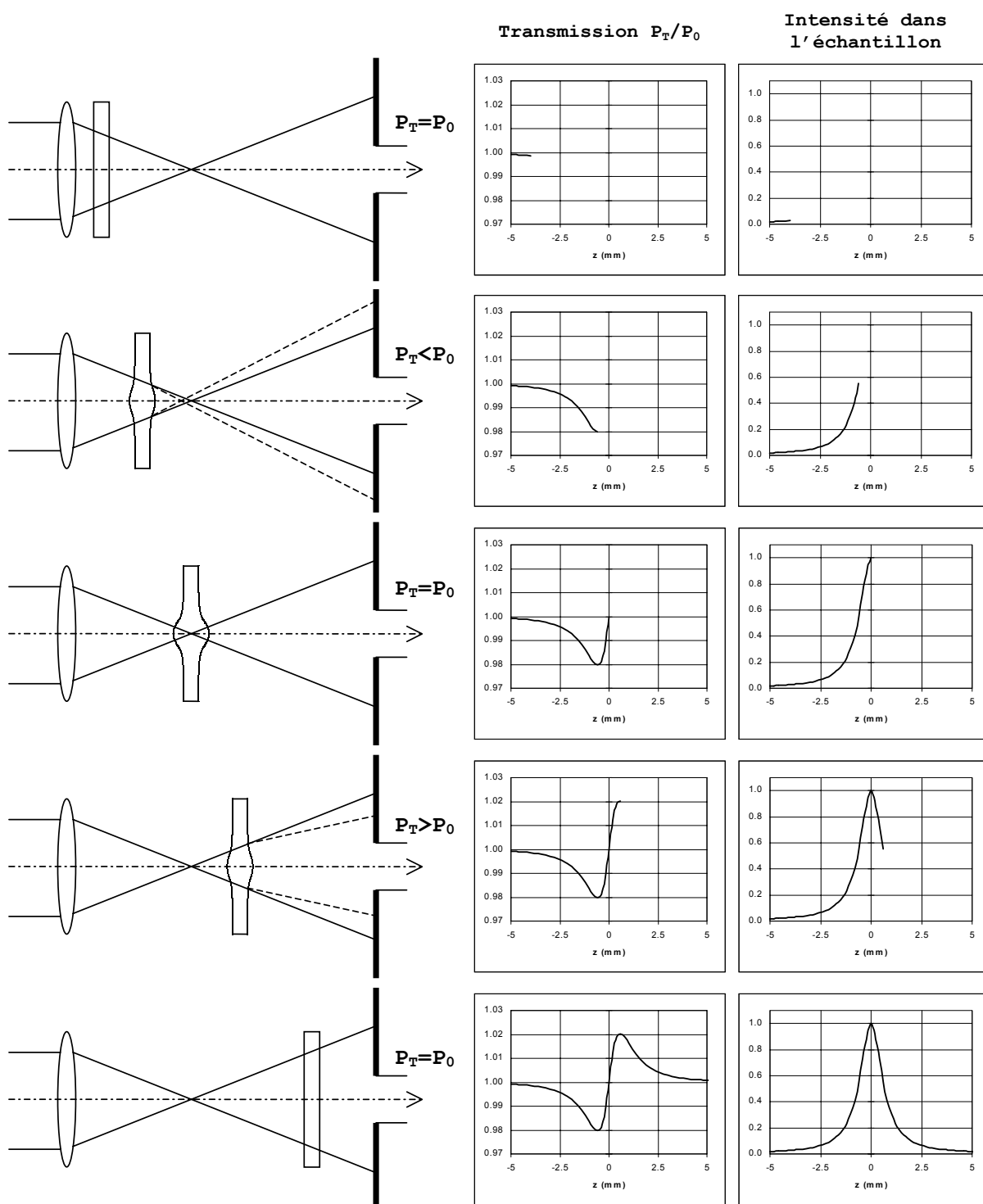


FIG. 2.1 – Principe de base de la méthode de Z-scan. Les courbes représentent la puissance normalisée transmise par le diaphragme et l'intensité sur l'axe optique du faisceau en fonction de la position longitudinale de l'échantillon. Pour simplifier l'illustration, la variation d'indice dans l'échantillon a été illustrée par une déformation géométrique de l'échantillon.

2.2.2 Transmission normalisée

Un des intérêts principaux de cette configuration par rapport à l'étude directe de la déformation du faisceau est de faire varier implicitement l'intensité dans l'échantillon. Ainsi, lorsque l'échantillon est très éloigné du point de focalisation, la puissance transmise P_0 peut servir de puissance de référence car elle représente la puissance transmise lorsque l'intensité dans l'échantillon est trop faible pour engendrer une variation d'indice significative. Cette puissance transmise P_0 permet d'introduire la notion de transmission normalisée, définie comme le rapport entre la puissance transmise par le diaphragme pour une position quelconque de l'échantillon, divisée par cette puissance de référence P_0 .

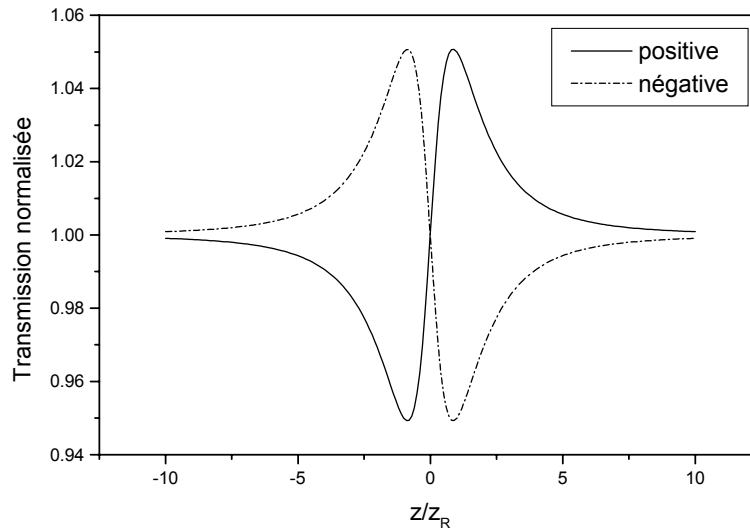


FIG. 2.2 – Allure des courbes de transmission normalisée dans le cas d'une variation d'indice positive ou négative dans l'échantillon (cas d'un faisceau gaussien et d'un échantillon fin devant la longueur de Rayleigh z_R du faisceau qui sera définie plus loin)

En l'absence d'effets non-linéaires dans l'échantillon, le signal transmis resterait constant égal à P_0 . En présence d'effets non-linéaires, on s'intéresse alors à l'évolution de la **transmission normalisée** en fonction de la position longitudinale de l'échantillon sur l'axe optique du faisceau. L'allure des courbes de transmission normalisée est représentée à la figure 2.2 suivant que l'indice de réfraction non-linéaire est positif ou négatif. Cette figure montre la signature caractéristique du signal de Z-scan comportant un maximum et un minimum de part et d'autre du point de focalisation. Le paramètre ΔT est défini comme la différence de transmission normalisée entre ces deux extrema. Nous verrons

que, moyennant quelques approximations, ce paramètre est proportionnel à l'indice de réfraction non-linéaire.

2.2.3 Défectivité

A ce stade, quelques remarques peuvent d'ores et déjà être faites sur quelques limitations inhérentes à ce principe de mesure.

Tout d'abord, l'obtention d'une courbe de transmission normalisée demande, au minimum, l'utilisation d'autant d'impulsions laser que de points de mesure nécessaires à résoudre les variations en z de la transmission normalisée. Ceci n'est pas forcément nécessaire avec les autres méthodes de mesure décrites au chapitre précédent. Nous allons voir que la répétabilité des impulsions laser va ainsi avoir un impact déterminant sur la défectivité de la méthode.

Le signal recherché ici correspond à une faible variation de la puissance transmise par le diaphragme. En terme de détection, cette méthode n'est pas "centrée", c'est à dire qu'elle est basée sur la mesure de faibles variations d'une grandeur non nulle, et elle-même fluctuante. Ce type de mesure est donc particulièrement sensible aux fluctuations de puissance du faisceau, ce qui limite sa défectivité.

Dans le but d'améliorer la défectivité de la méthode en se rapprochant d'une méthode "centrée", une configuration alternative peut être utilisée en observant non plus la puissance sur l'axe optique du faisceau en champ lointain, mais les variations de la puissance contenue dans sa périphérie. Cette méthode est connue sous le terme anglo-saxon de "eclipsing Z-scan" ou "EZ-scan" [54]. Pour ce faire, le diaphragme est remplacé par un écran circulaire opaque ne laissant passer que 1% de la puissance totale du faisceau. Si le rapport signal sur bruit est considérablement amélioré par ce principe, il s'avère que cette méthode fournit des valeurs de l'indice de réfraction assez peu sûres. En effet, ce genre de méthode nécessite une modélisation parfaitement adapté au type de faisceau utilisé. Tout écart au modèle choisi peut conduire à des erreurs importantes sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire et il est fortement recommandé d'utiliser la méthode de Z-scan, si possible, dans sa configuration initiale [54].

Par ailleurs, les fluctuations en puissance du faisceau induisent une fluctuation, au

mieux identique, de la puissance transmise, et donc de la transmission normalisée impulsions après impulsions. Dans l'approximation d'une puissance transmise proportionnelle à la puissance totale du faisceau, la puissance transmise est entachée d'un bruit multiplicatif. Ainsi, il n'est pas possible de détecter de variation de transmission normalisée inférieure à l'amplitude des fluctuations du laser impulsion après impulsion. Pour se débarrasser d'un tel bruit multiplicatif, il est néanmoins possible d'utiliser une voie de référence et de diviser la puissance transmise par la voie principale, par la puissance mesurée sur cette voie de référence. Pour des matériaux possédant de très fortes non-linéarités ou lorsque des lasers à impulsions ultra-courtes (ps-fs) sont utilisés, il n'est souvent pas nécessaire d'utiliser de voie de référence, tant la variation de transmission normalisée est importante et bien supérieure aux fluctuations du laser. Lorsque l'amplitude du phénomène non-linéaire est plus faible, une simple réflexion du faisceau sur un pyromètre est utilisée comme voie de référence. Ce type de procédé suppose que l'énergie totale du faisceau est corrélée à la puissance transmise par la voie de mesure principale. Ceci peut suffire à améliorer la sensibilité de la méthode, mais la configuration la plus sûre consiste à constituer une voie de référence parfaitement identique à la voie de mesure.

Le signal le plus faible qu'il sera alors possible de détecter à l'aide de cette méthode sera donc limité par la stabilité du laser et la bonne corrélation entre les voies de mesure.

2.2.4 Influence du diamètre du diaphragme et mesure de l'absorption non-linéaire

La transmission en puissance du diaphragme placé devant le détecteur vaut, dans le cas d'un faisceau à profil gaussien :

$$S = 1 - e^{-2r_a^2/w_a^2}$$

où r_a et w_a représentent respectivement le rayon du diaphragme et le rayon en intensité à $1/e^2$ du faisceau dans le plan du diaphragme.

A partir d'une étude numérique du signal de Z-scan, M. Sheik-Bahae et ses collaborateurs ont montré que la sensibilité de la méthode à la mesure de réfraction non-linéaire décroît en $(1 - S)^{0,25}$, si $S < 0,7$. Retenons surtout que le maximum de sensibilité est atteint lorsque $S \ll 1$, c'est à dire lorsque le diamètre du diaphragme est faible devant

le diamètre du faisceau. On parle alors de configuration de Z-scan "fermée" (closed Z-scan).

Par ailleurs, pour $S = 1$, désigné comme la configuration de Z-scan "ouverte" (open Z-scan), la méthode n'est plus sensible à la réfraction non-linéaire. En revanche, elle reste sensible à l'absorption non-linéaire de l'échantillon. Tout comme dans le cas de la réfraction non-linéaire, il est possible d'observer de l'absorption photo-induite dans certains matériaux. Un coefficient d'absorption non-linéaire α_2 est introduit de la même façon que l'indice de réfraction non-linéaire a été introduit. Si α_0 désigne le coefficient d'absorption linéique du matériau à faible intensité (exprimé couramment en cm^{-1}), le coefficient d'absorption linéique global α dépend de l'intensité I de la manière suivante ¹ :

$$\alpha(I) = \alpha_0 + \alpha_2 I \quad (2.1)$$

α_2 est alors exprimé en cm/W , si l'intensité est exprimée en W/cm^2 .

En configuration de Z-scan "ouvert", c'est à dire pour $S = 1$, la déformation du faisceau provoquée par le phénomène de réfraction n'est plus visible puisque c'est la puissance totale du faisceau transmis qui est mesurée. En revanche, l'absorption photo-induite engendre une perte de puissance dépendant de l'intensité incidente, et donc de la position de l'échantillon dans le faisceau focalisé incident. La figure 2.3 illustre le principe de mesure de l'absorption en configuration "ouverte".

Dans le cas d'un faisceau gaussien et d'un échantillon fin devant la profondeur de champ du faisceau, l'allure de la courbe de transmission normalisée obtenue en configuration "ouverte" est représentée à la figure 2.4.

Si la mesure en configuration "ouverte" est insensible au phénomène de réfraction non-linéaire, il est important de noter que l'absorption non-linéaire intervient, quant à elle, lors de l'acquisition pour $S \ll 1$ et déforme les courbes de Z-scan. En effet, pour s'en convaincre, il suffit de se souvenir, par exemple, que lorsque l'échantillon est placé exactement au point de focalisation ($z = 0$), la transmission normalisée retrouve son niveau initial obtenu loin du point de focalisation ($T = 1$). Or, si l'échantillon présente de l'absorption non-linéaire, une partie de la puissance du faisceau est absorbée à cette

¹Ceci n'est vrai que dans le cas d'un mécanisme d'absorption à deux photons, car c'est un mécanisme du troisième ordre.

position, et la puissance transmise P_T est inférieure à la puissance initiale P_0 loin du point de focalisation. Ainsi, la transmission normalisée est inférieure à 1 en $z = 0$.

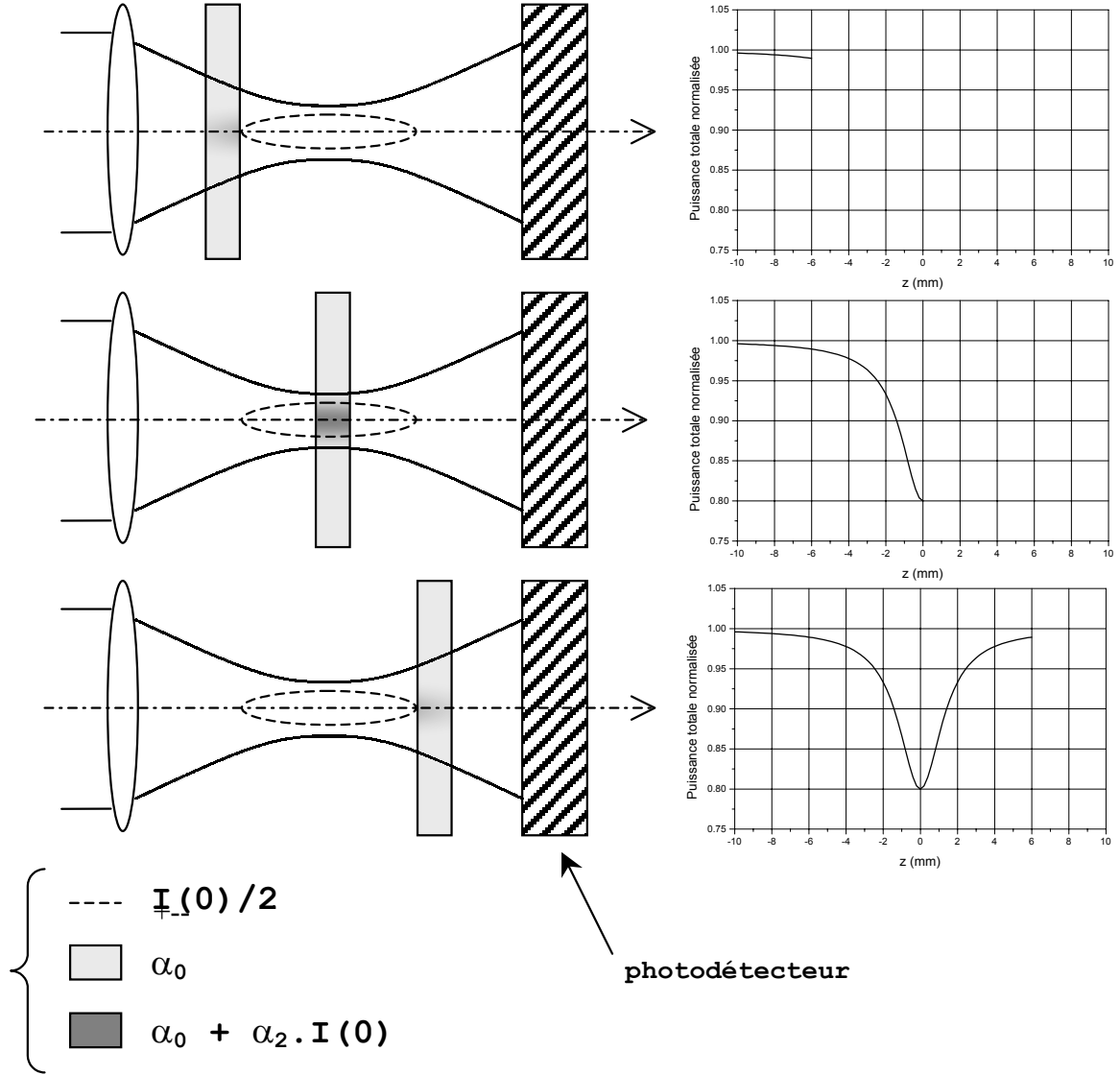


FIG. 2.3 – Mesure de l'absorption non-linéaire en configuration de Z-scan "ouverte"

Afin de déterminer sans ambiguïté l'indice de réfraction non-linéaire et le coefficient d'absorption non-linéaire, il convient d'abord de réaliser une acquisition pour $S = 1$ qui permet de déduire la valeur du coefficient d'absorption non-linéaire seul. Cette valeur doit être ensuite utilisée dans les modèles pour déduire l'indice de réfraction non-linéaire à partir des mesures faites pour $S \ll 1$.

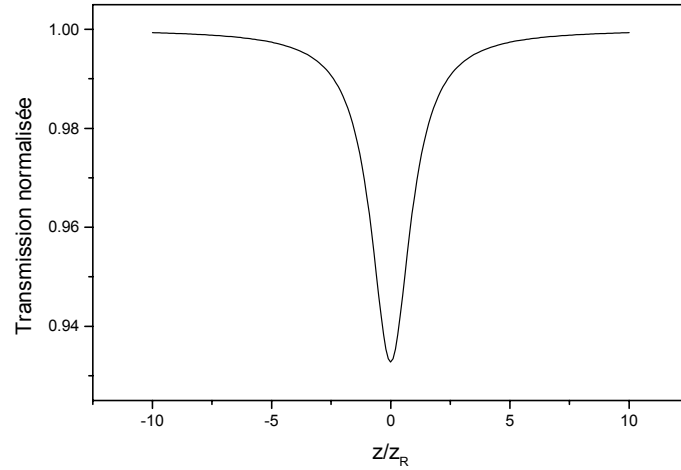


FIG. 2.4 – *Allure de la courbe de transmission normalisée dans le cas $S = 1$ pour la mesure de l'absorption non-linéaire (cas d'un faisceau gaussien et d'un échantillon fin devant la longueur de Rayleigh z_R du faisceau qui sera définie plus loin)*

2.2.5 Influence de la diffusion par l'échantillon

En configuration de Z-scan, l'influence de la diffusion lumineuse s'est révélée particulièrement gênante et il est apparu important d'évoquer ce phénomène, tant ses conséquences peuvent être dramatiques sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire.

Vu la configuration expérimentale choisie et dans le cas où l'échantillon possède une qualité de surface médiocre, les pertes par diffusion sont à l'origine d'une variation de transmission normalisée qui s'ajoute à la variation due au phénomène non-linéaire. Ceci peut déformer considérablement les courbes obtenues. Sans entrer dans les détails, quelques considérations simples, étayées par des résultats expérimentaux que nous avons observés, permettent de comprendre le type de problème que peut poser la diffusion en configuration de Z-scan.

Tout d'abord, les inhomogénéités surfaciques et volumiques des échantillons utilisés provoquent une perte par diffusion qui se caractérise grossièrement par l'observation d'un lobe de diffusion de largeur angulaire d'autant plus grande que l'amplitude des inhomogénéités est importante. La figure 2.5 illustre l'effet de la diffusion en configuration de Z-scan (pour simplifier la compréhension, le cas d'un faisceau parallèle a été considéré). En position 1, l'échantillon est éloigné du diaphragme. La fraction de flux diffusé qui par-

ticipe à la puissance transmise est donc faible. En revanche, en position 2, la contribution de la diffusion transmise par le diaphragme peut devenir importante.

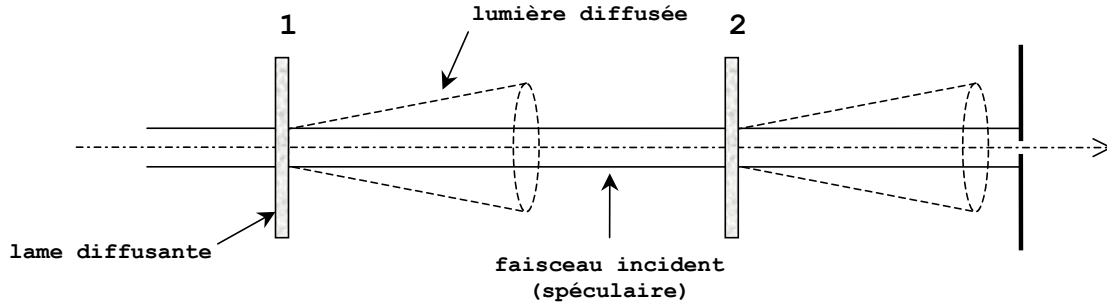


FIG. 2.5 – *Effet de la diffusion lumineuse en configuration de Z-scan*

Ceci a été constaté expérimentalement et est illustré à la figure 2.6 par des mesures de transmission normalisée effectuées à 532 nm sur un échantillon de verre de type flint de qualité optique médiocre. Une augmentation du signal transmis est constaté au fur et à mesure que l'échantillon se rapproche du diaphragme. Ce type de diffusion est un effet linéaire qui est observé également à faible intensité. En effectuant une mesure à faible intensité et en la retranchant point par point à la mesure effectuée avec une forte intensité, il est possible de se débarrasser de la diffusion par l'échantillon [40]. Ceci est également visible sur la figure 2.6.

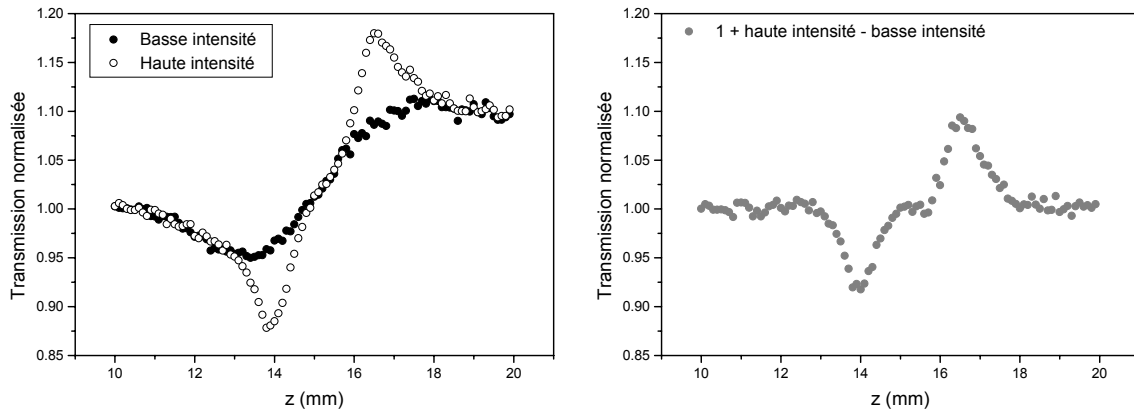


FIG. 2.6 – *Courbes de transmission normalisée observées sur un verre de type flint à 532 nm (courbe à haute intensité, à faible intensité et différence)*

Dans le cas d'une inhomogénéité ponctuelle (rayure, poussière, etc...), l'effet de la

diffusion peut être également très gênant et engendrer des tâches de diffraction complexes sur le diaphragme. Ce cas est illustré à la figure 2.7. Dans le cas d'un faisceau focalisé comme c'est le cas en configuration de Z-scan, une telle inhomogénéité ponctuelle peut se trouver hors du faisceau (position 1) ou dans le faisceau (position 2) au cours du balayage, induisant une contribution plus ou moins importante de cette diffraction dans la puissance transmise par le diaphragme. Dans tous les cas, l'inhomogénéité se déplace dans le faisceau et dans le pire des cas, il a même été parfois observé un défilement d'anneaux de diffraction devant l'ouverture du diaphragme, induisant une oscillation importante de la transmission normalisée. La figure 2.8 illustre un tel comportement observé expérimentalement. Il est clair que les courbes de transmission sont apparemment normales jusqu'à ce qu'une inhomogénéité pénètre dans le champ du faisceau et vienne perturber la transmission. La répétabilité des courbes balayage après balayage laisse peu de doute sur la nature de telles fluctuations.

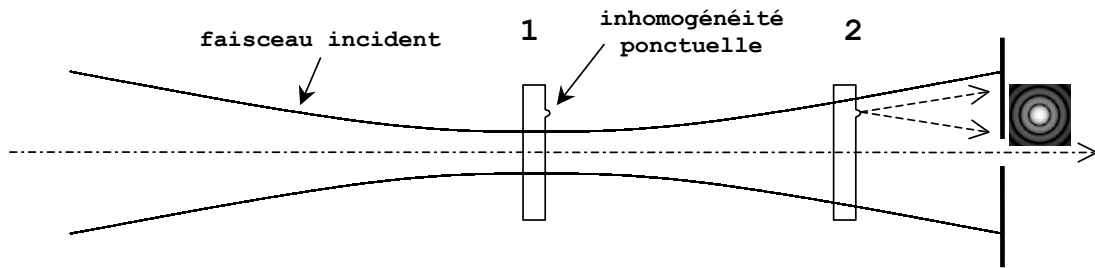


FIG. 2.7 – *Effet d'une inhomogénéité ponctuelle sur l'échantillon en configuration de Z-scan*

En lumière cohérente, un autre phénomène lié à la diffusion lumineuse peut perturber la mesure, c'est le phénomène de granularité laser ou speckle [55]. Lorsqu'un faisceau de lumière cohérente éclaire une surface diffusante, toutes les figures de diffraction engendrées par les défauts diffusants interfèrent et se brouillent pour former une figure d'interférence complexe d'apparence "granuleuse". Par ailleurs, la taille moyenne des "grains" et d'autant plus grande que le faisceau incident est de faible diamètre [56]. Ceci se comprend aisément en remarquant que, si le faisceau possède un diamètre de l'ordre de grandeur des défauts diffusants, la figure d'interférence sera beaucoup plus simple et moins brouillée, engendrant des figures d'interférence plus contrastées et de dimensions caractéristiques plus importantes. Ce type de comportement est très connu et souvent utilisé expérimentalement pour focaliser un faisceau cohérent sur une surface diffusante, comme les bords

d'une fente, par exemple, en maximisant la taille des grains de speckle observés en diffusion.

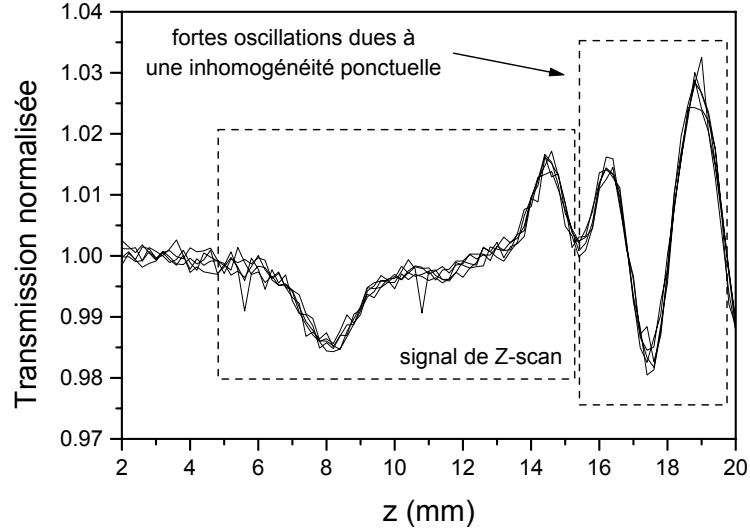


FIG. 2.8 – 5 courbes de transmission normalisée mesurées consécutivement au même point, obtenues à 1064 nm sur un échantillon de silice de 11 mm d'épaisseur

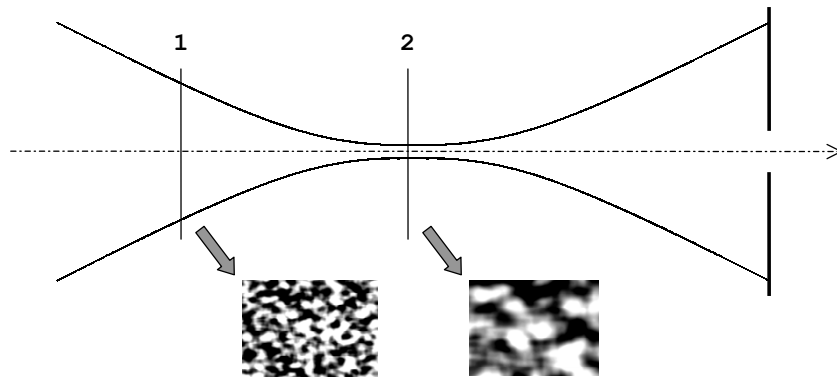


FIG. 2.9 – Evolution de la granularité laser en configuration de Z-scan

Ce phénomène a été observé à l'oeil en configuration de Z-scan à 532 nm et il est illustré à la figure 2.9. Lorsqu'une des surfaces de l'échantillon est approchée du point de focalisation du faisceau, des grains de speckle de dimension croissante sont observés en diffusion sur un écran. Suivant les zones explorées de l'échantillon, ces grains de speckle

peuvent être très contrastés et de dimension similaire à celle du diamètre de l'ouverture du diaphragme. Ce phénomène peut donc également engendrer des variations de la puissance transmise n'ayant aucun lien avec le phénomène non-linéaire. En outre, ce phénomène perturbe les courbes de Z-scan autour du point de focalisation, c'est à dire exactement là où se trouve le signal intéressant à exploiter.

Tous ces aspects du phénomène de diffusion lumineuse peuvent avoir lieu simultanément en configuration de Z-scan. L'effet global sur les courbes de transmission normalisée est très difficile à prévoir. Par ailleurs, il n'est pas toujours évident de s'en débarrasser efficacement. En effet, il a été vu que, lorsqu'il est faible, le phénomène de diffusion peut apparemment être déduit aisément à l'aide d'une acquisition à faible intensité. Or, la diffusion peut perturber les courbes de transmission normalisée autrement qu'en apportant une contribution linéaire. Le phénomène de granularité laser, s'il est suffisamment important, peut perturber le faisceau incident. Ainsi, c'est un faisceau bruité qui induit la lentille d'indice dans le matériau. Les conséquences d'une telle perturbation sur la transmission normalisée n'est pas évidente à déduire.

Pour illustrer ces propos et mettre en garde sur les conséquences d'éventuelles fluctuations spatiales du faisceau, reprenons le cas du phénomène de granularité laser ou speckle, et plaçons nous dans le pire des cas : celui d'une répartition de champ électrique statistiquement homogène, d'intensité moyenne I_m , mais pourvu de fortes fluctuations spatiales induite par le phénomène de speckle. Le champ électrique E peut être considéré comme une variable aléatoire complexe obéissant à une loi statistique gaussienne, caractéristique des fluctuations de speckle [57]. Une propriété importante d'une telle variable aléatoire est que :

$$\langle E^2 \rangle = 2 \langle E \rangle^2 \quad (2.2)$$

où $\langle \dots \rangle$ représente une moyenne spatiale. D'après cette propriété, on peut montrer que si cette onde traverse un milieu non-linéaire de type Kerr, le déphasage non-linéaire effectif subi dans le milieu est théoriquement deux fois supérieur au déphasage non-linéaire qu'aurait subi une onde plane de même intensité moyenne I_m , mais dont le champ électrique est uniformément réparti [57]. Si cet exemple est un peu caricatural, retenons tout de même que, d'une manière générale, une répartition d'intensité fluctuante provoque un déphasage non-linéaire supérieur à une répartition uniforme de même valeur moyenne. Si le faisceau incident est fortement bruité par du speckle, le déphasage non-linéaire effectif

peut donc être accru. Il faut, en effet, toujours être prudent quant aux conséquences de fluctuations sur un système non-linéaire. Ceci peut paraître trivial pour un "habitué" des systèmes non-linéaires mais ce genre de considérations méritait d'être rappelé.

Cette méthode de mesure est donc particulièrement sensible à tous les aspects du phénomène de diffusion. Afin de limiter au maximum cet artefact de mesure, il est donc préférable de tenter de l'éviter plutôt que de le corriger. Il faut alors travailler avec des échantillons de très bonne qualité optique et correctement nettoyés. Enfin, il convient de toujours choisir soigneusement une zone peu diffusante sur l'échantillon et de s'assurer après acquisition que l'allure des courbes est bien conforme aux simulations. Ce dernier point nécessite de bien connaître les échantillons étudiés, les paramètres du montage et le faisceau incident, afin d'utiliser la modélisation la plus juste pour pouvoir reconnaître sans aucune ambiguïté les courbes de transmission normalisée déformées par la diffusion. Le problème de la diffusion est rarement soulevé dans les études de Z-scan recensées. Pourtant, la méthode de Z-scan est, a priori, particulièrement sensible à ce phénomène. En effet, lorsque les effets non-linéaires sont particulièrement élevés, la diffusion apporte une contribution difficile à déceler et quasi-invisible sur les courbes de transmission normalisées. Pourtant, ce phénomène a très certainement une influence sur le niveau des extrema des courbes de transmission normalisées car il perturbe le profil spatial du faisceau incident.

2.3 Modélisation

2.3.1 Rappels sur la propagation des faisceaux gaussiens

La plupart des modèles proposés pour décrire l'effet du déplacement d'un échantillon non-linéaire dans un faisceau focalisé utilisent une description du faisceau incident de type gaussien. En effet, il existe une expression analytique simple pour décrire la propagation de faisceaux gaussiens. Cette approche permet d'obtenir des expressions analytiques décrivant le phénomène observé dans la configuration de Z-scan. Avant de passer en revue les différentes expressions analytiques développées dans différents cas de figures (échantillons fins, échantillons épais, forts déphasages non-linéaires), nous rappelons ici quelques relations utiles concernant la propagation des faisceaux gaussiens.

Pour le mode fondamental gaussien TEM_{00} , l'amplitude complexe du champ électrique s'écrit :

$$E(r, z, t) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} \exp \left(-\frac{r^2}{w^2(z)} + \frac{ikr^2}{2R(z)} \right) \times \exp(i\phi(z, t)) \quad (2.3)$$

La définition de la cote z est représentée sur la figure 2.10. La coordonnée r représente la distance à l'axe ($0z$). k représente l'amplitude du vecteur d'onde, égale à $2\pi n_0/\lambda$, où n_0 est l'indice linéaire du milieu. Le paramètre w_0 représente le rayon à $1/e$ en amplitude ou à $1/e^2$ en intensité à $z = 0$. $z_R = kw_0^2/2$ représente la longueur de Rayleigh du faisceau, définie comme la distance au bout de laquelle l'intensité sur l'axe optique est divisée par 2. Les autres paramètres $w(z)$ et $R(z)$ représentent respectivement le rayon du faisceau et la courbure de phase à la position z . Ils vérifient les relations suivantes :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R} \right)^2} \quad (2.4)$$

$$R(z) = z + \frac{z_R^2}{z} \quad (2.5)$$

La fonction $\phi(z, t)$ regroupe des termes de phase uniquement dépendants de z et de t . Ce terme contient notamment le terme de propagation : $-i\omega t + ikz$. Il n'aura pas de conséquence sur l'autofocalisation du faisceau et sera par conséquent toujours ignoré par la suite.

Quand $z \rightarrow \infty$, l'évolution du rayon du faisceau prend l'expression asymptotique $w(z) \approx w_0 z/z_R$. On définit alors la demi-divergence θ du faisceau qui vérifie alors la relation $\tan \theta = \lambda/(\pi w_0)$.

La propagation d'un faisceau gaussien TEM_{00} est illustrée à la figure 2.10.

Dans la description des modèles qui va suivre, ce type de faisceau a été utilisé pour trouver des solutions analytiques au problème de Z-scan dans plusieurs cas de figure. Le cas de l'utilisation de faisceaux non-gaussiens sera évoqué par la suite et discuté, principalement au chapitre 4.

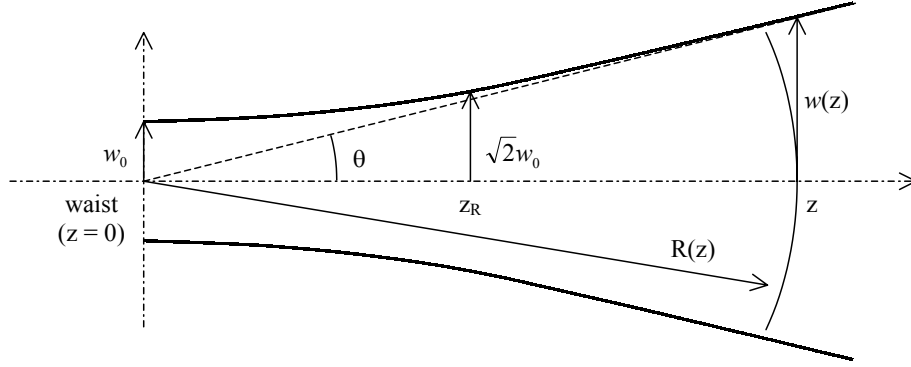


FIG. 2.10 – *Divergence du mode fondamental gaussien à partir du plan de focalisation (plus connu sous le terme anglo-saxon de "waist") : notations et paramètres géométriques (courbe d'intensité à $1/e^2$)*

2.3.2 Cas d'échantillons fins

Dans le cas d'échantillons fins, c'est à dire d'épaisseur faible devant la longueur de Rayleigh du faisceau incident, on peut trouver une solution analytique simple décrivant l'évolution de la transmission normalisée en configuration de Z-scan [40]. Dans le cas de faibles variations d'indice induite par effet non-linéaire, on peut considérer que le faisceau incident induit une variation d'indice dans le matériau égale à $\Delta n(r, z) = \gamma I(r, z)$. Si l'épaisseur de l'échantillon est, par ailleurs, faible devant la longueur de Rayleigh du faisceau incident, on peut considérer que la répartition de champ électrique sur la face d'entrée de l'échantillon est à peu près la même que sur la face de sortie, ceci dans le cas linéaire. Dans le cas non-linéaire, on considère que le champ électrique incident a simplement été déphasé de $\Delta\phi$, déphasage provoqué par la variation d'indice non-linéaire. Ce déphasage est une fonction d'espace $\Delta\phi(r, z)$ proportionnelle à la répartition d'intensité dans l'échantillon, c'est à dire, dans le cas d'un faisceau gaussien :

$$\Delta\phi(r, z) = \frac{\Delta\phi_0}{1 + z^2/z_R^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{w^2(z)}\right) \quad (2.6)$$

avec $\Delta\phi_0 = k\Delta n_0 L_{eff}$.

Δn_0 représente la variation d'indice sur l'axe optique en $z = 0$, à savoir γI_0 où I_0 est l'intensité sur l'axe optique au point de focalisation (i.e. en $(r, z) = (0, 0)$).

$L_{eff} = (1 - e^{-\alpha L})/\alpha$ représente l'épaisseur effective de l'échantillon compte tenu de

l'absorption linéaire de l'échantillon α , L étant l'épaisseur réelle de l'échantillon.

En tenant compte de l'absorption linéaire, le champ électrique sur la face de sortie de l'échantillon est alors finalement égal au champ électrique incident multiplié par le terme $\exp(-\alpha L/2) \exp(i\Delta\phi(r, z))$. Utilisant une méthode de décomposition en faisceaux gaussiens de ce terme, on montre finalement que, pour de faibles déphasages non-linéaires (i.e. $|\Delta\phi_0| \ll 1$) et pour une observation en champ lointain, la transmission normalisée s'exprime de la manière suivante² :

$$T(\zeta, \Delta\phi_0) = 1 + \frac{4\Delta\phi_0\zeta}{(\zeta^2 + 9)(\zeta^2 + 1)} \quad (2.7)$$

où $\zeta = z/z_R$.

Dans le cas d'un faisceau gaussien, d'un échantillon fin, de faibles non-linéarités et d'une observation en champ lointain avec une ouverture de diaphragme faible devant le diamètre du faisceau sur l'ouverture, la différence ΔT entre transmission normalisée maximale et minimale est proportionnelle au déphasage non-linéaire et donc à l'indice de réfraction non-linéaire. ΔT vaut dans ce cas :

$$\Delta T \approx 0,406 \times \Delta\phi_0 = 0,406 \times k\Delta n_0 L_{eff} \quad (2.8)$$

Dans ce cas de figure, la sensibilité de la méthode est définie comme le rapport entre ΔT et le déphasage non-linéaire introduit dans l'échantillon. Cette sensibilité est ici fixe, égale à 0,406. Par ailleurs, la distance Δz entre les extrema de la courbe est proportionnelle à la longueur de Rayleigh du faisceau [40] :

$$\Delta z = 1,717 \times z_R \quad (2.9)$$

Dans ces conditions, l'allure des courbes de transmission normalisée est bien déterminée et dépend de peu de paramètres. Pour un faisceau gaussien différent et un déphasage non-linéaire différent, la courbe de transmission normalisée standard, décrite par la relation 2.7, est simplement "dilatée" en ordonnée et en abscisse.

²Notons que nous ne nous intéressons ici qu'au cas d'une absorption non-linéaire nulle. Les modèles analytiques permettant de décrire la présence d'absorption non-linéaire [40, 58] ne seront pas décrits dans ce document.

La relation 2.8 nous informe que pour une variation non-linéaire du chemin optique de seulement $\lambda/100$, la variation de transmission normalisée théorique associée sera de 2,5%. Cette méthode est donc particulièrement sensible. Pourtant, dans notre cadre d'étude et avec la configuration expérimentale qui sera adoptée, nous verrons que cette sensibilité ne suffit pas à la mesure d'indice de réfraction non-linéaire aussi faible que celui de la silice en régime nanoseconde.

2.3.3 Cas d'échantillons épais

Le cas d'une épaisseur d'échantillon faible devant la longueur de Rayleigh du faisceau est beaucoup trop limitatif dans notre cadre d'étude. Pour augmenter la sensibilité de la méthode de Z-scan, il est possible de travailler dans une configuration où l'épaisseur de l'échantillon et la longueur de Rayleigh sont du même ordre de grandeur. Le modèle présenté précédemment n'est alors plus valable. La modélisation se complique fortement puisque maintenant, le faisceau évolue notablement dans l'échantillon et provoque une variation d'indice dépendant non seulement de la position transversale, mais aussi de la position longitudinale dans l'échantillon. Hermann et McDuff [58] ont développé un modèle adapté à ce cas de figure menant à une expression analytique simple, toujours dans le cas de faisceaux gaussiens et de faibles déphasages non-linéaires.

Le principe de base du modèle développé par Hermann et McDuff a été de chercher des solutions analytiques à l'équation de propagation scalaire paraxiale non-linéaire, mieux connue sous le nom d'équation de Schrödinger non-linéaire à conditions initiales en z . Par applications successives de transformations de Laplace, il est possible d'exprimer une solution de cette équation de propagation à l'aide d'une superposition linéaire de modes de Laguerre-Gauss dans le cas où l'absorption linéaire est négligeable. Dans le cas d'un faisceau gaussien et d'un faible déphasage non-linéaire, la répartition de champ électrique sur la face de sortie a été calculée analytiquement. Enfin, utilisant le principe de Huygens-Fresnel, il est possible de calculer la répartition de champ électrique sur le plan du diaphragme. La configuration adoptée et les notations associées au calcul de Hermann et McDuff sont décrits à la figure 2.11.

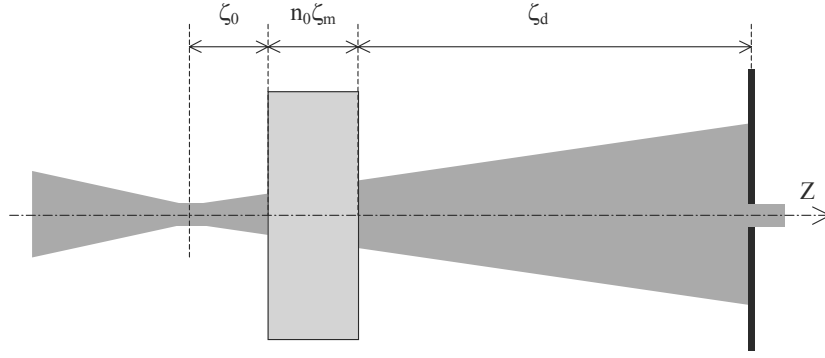


FIG. 2.11 – Configuration et notations dans le cas du modèle d'Hermann et McDuff

Dans le cas d'une observation en champ lointain ($\zeta_d \gg 1$) et d'une réfraction non-linéaire pure (pas d'absorption non-linéaire), la transmission normalisée prend la forme suivante :

$$T(z, \beta) = 1 - \frac{1}{8} \beta \ln \left(\frac{9 + v_b^2}{1 + v_b^2} \times \frac{1 + v_a^2}{9 + v_a^2} \right) \quad (2.10)$$

avec $v_a = \zeta_0$ et $v_b = \zeta_0 - \zeta_m$.

ζ_0 et ζ_m sont des paramètres de distance normalisée par rapport à la longueur de Rayleigh du faisceau incident respectivement dans le vide et dans le milieu. Si z est la position de la face d'entrée de l'échantillon par rapport au plan de focalisation, on a :

$$\zeta_0 = -\frac{z}{z_R} \quad \text{et} \quad \zeta_m = \frac{L}{n_0 z_R}$$

où n_0 est l'indice linéaire du milieu et L l'épaisseur de l'échantillon.

Par ailleurs, le paramètre β représente ici un déphasage non-linéaire effectif maximum dans le milieu et s'exprime de la manière suivante :

$$\beta = 2k\gamma I_0 n_0 z_R \quad (2.11)$$

Dans le cas d'échantillons épais, d'épaisseur supérieure à la longueur de Rayleigh du faisceau incident, il est en effet plus commode de définir un déphasage non-linéaire proportionnel à la longueur de Rayleigh et non plus proportionnel à L . Dans ce cas de figure, c'est bien sur une distance égale à deux fois la longueur de Rayleigh que les interactions non-linéaires vont être significatives. Ce déphasage est qualifié de "maximal" car si l'épaisseur de l'échantillon est inférieure à $2z_R$, le déphasage non-linéaire effectif dans l'échantillon sera inférieur à cette valeur.

La figure 2.12 représente l'évolution des courbes de transmission normalisée en fonction du paramètre $\zeta_m = \frac{L}{n_0 z_R}$. Lorsque le paramètre ζ_m est petit devant 1, les courbes convergent vers le modèle obtenu précédemment dans le cas d'échantillons fins. Pour un déphasage non-linéaire β constant, la sensibilité de la méthode de Z-scan croît rapidement avec l'épaisseur de l'échantillon pour atteindre une valeur limite, lorsque $L \gg z_R$. En effet, dans ce cas, la distance d'interaction non-linéaire est limitée uniquement par la longueur de Rayleigh. D'autre part, l'évolution de la distance normalisée $\Delta z/z_r$ entre les extrema de transmission normalisée est représentée à la figure 2.13. Pour un échantillon d'épaisseur très inférieure à z_R , l'écartement entre les deux extrema tend vers la valeur 1,717 obtenue dans le cas d'échantillons fins, puis augmente avec ζ_m et tend finalement vers ζ_m .

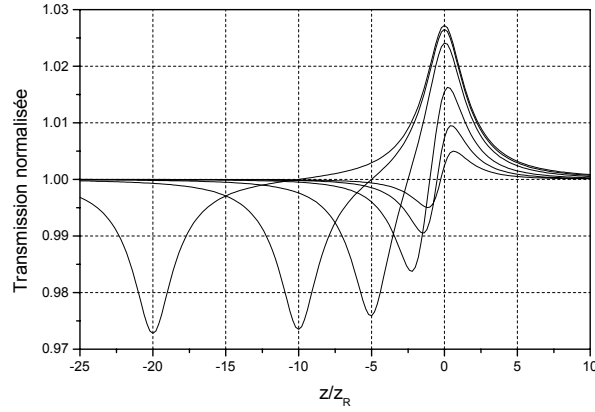


FIG. 2.12 – *Allure des courbes de transmission normalisée dans le cas d'échantillons épais ($\beta = 0, 1$ et $\zeta_m = \frac{1}{2}, 1, 2, 5, 10$ et 20)*

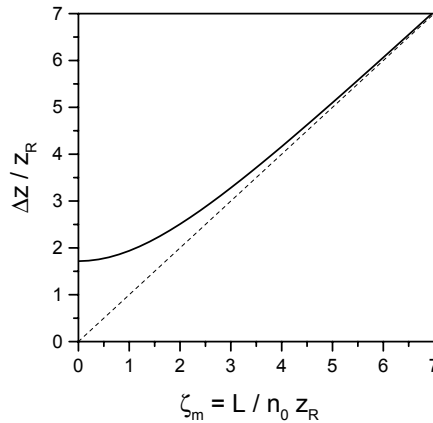


FIG. 2.13 – *Evolution de la distance entre les extrema de transmission normalisée en fonction du rapport ζ_m*

En dérivant l'expression 2.10 par rapport à ζ_0 , on peut exprimer la valeur de ΔT en fonction du paramètre ζ_m et du déphasage non-linéaire β . La figure 2.14 représente la "sensibilité"³ de Z-scan $\Delta T/\beta$ en fonction de ζ_m , dans le cas d'un échantillon épais. Le même rapport de sensibilité a également été représenté à l'aide de la relation 2.8 pour le cas d'échantillons fins, afin de montrer la limite de validité de ce modèle.

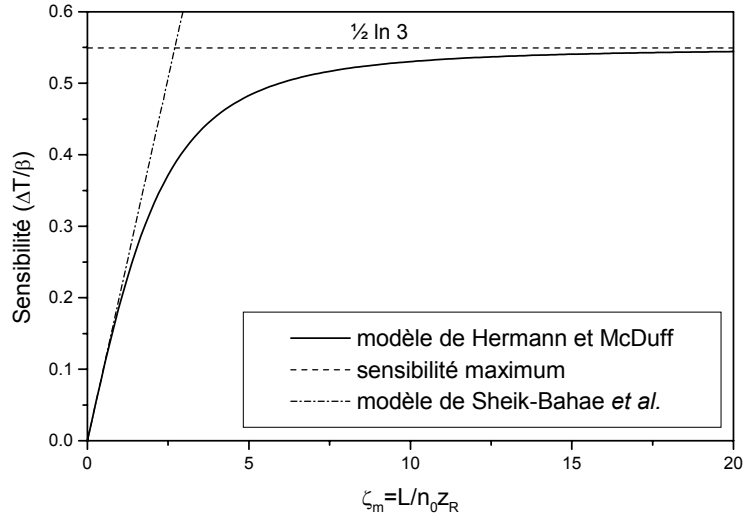


FIG. 2.14 – Sensibilité $\Delta T/\beta$ en fonction de ζ_m

D'après le modèle de Hermann et McDuff, la sensibilité de Z-scan tend vers $1/2 \times \ln 3$ quand $\zeta_m \gg 1$. Ainsi, dans le cas d'échantillon de l'ordre de grandeur de la longueur de Rayleigh du faisceau, la forme des courbes de transmission normalisée n'est plus aussi simple que dans le cas d'échantillons fins. Sensibilité et écartement entre les extrema sont liés au paramètre ζ_m qui caractérise le rapport de dimension entre l'épaisseur de l'échantillon et la profondeur de champ du faisceau. Par ailleurs, dans le cas limite d'un échantillon très supérieur à la longueur de Rayleigh, nous avons vu que la sensibilité de la méthode sature. Par ailleurs, lorsqu'on travaille dans le cas d'échantillon épais, il est

³Dans le cas d'échantillon fins, la notion de sensibilité est clairement définie comme le rapport ΔT sur le déphasage non-linéaire $\Delta\phi_0$ qui correspond à une variation d'indice constante obtenue sur une distance fixée par l'épaisseur de l'échantillon. Dans le cas d'un échantillon épais, il est important de remarquer que le déphasage effectif dans l'échantillon (et non β) dépend du rapport L/z_R . On parlera ici de "sensibilité" pour le rapport $\Delta T/\beta$, mais cette définition pourrait être affinée, par exemple en divisant plutôt ΔT par la traditionnelle intégrale B [59]. La courbe de "sensibilité" représentée ici permet tout de même de constater que pour des conditions expérimentales fixées (faisceau, échantillon), il est préférable de choisir une épaisseur d'échantillon de l'ordre de la longueur de Rayleigh du faisceau.

préférable de se placer dans le cas où la sensibilité est proche de son maximum, pour avoir un signal, d'une part plus élevé et d'autre part moins sensible au paramètre ζ_m .

2.3.4 Cas de forts déphasages non-linéaires

Les deux modèles présentés précédemment font une même hypothèse de faible valeur du déphasage non-linéaire. Pour savoir dans quelle mesure les modèles précédents sont valides, il est intéressant de connaître les conséquences d'un fort déphasage non-linéaire sur les courbes de transmission normalisée. Samad et Vieira ont élaboré une théorie valable pour des déphasages non-linéaires importants, mais ceci toujours dans le cas d'échantillons fins et d'un faisceau incident gaussien [60].

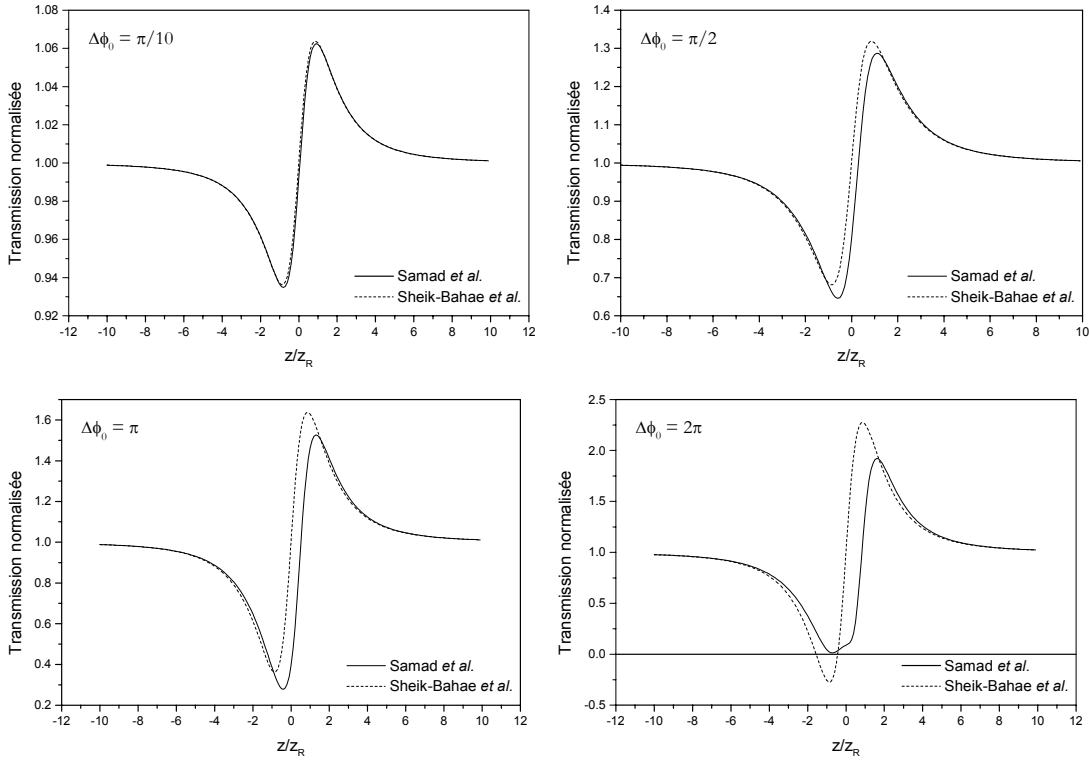


FIG. 2.15 – Transmission normalisée calculée à l'aide du modèle de Samad et Vieira pour des déphasages de $\pi/10$, $\pi/2$, π et 2π

Reprenant l'expression de Sheik-Bahae du champ électrique sur la face de sortie de l'échantillon, ils ont utilisé, non plus une décomposition gaussienne du champ, mais le principe d'Huygens-Fresnel pour calculer le champ sur l'axe optique au niveau du dia-

phragme. La seule hypothèse introduite est une hypothèse de paraxialité du faisceau. Le calcul rigoureux de l'intégrale de Fresnel introduit dans ce cas la fonction gamma incomplète. Utilisant enfin une décomposition en série de cette fonction intégrale, il est possible de calculer numériquement la transmission normalisée en fonction de la cote normalisée z/z_R . Pour une distance de $1000 \times z_R$ entre point de focalisation et diaphragme et en utilisant 100 termes dans la décomposition en série de la fonction gamma, nous avons calculé et représenté à la figure 2.15 les courbes de transmission normalisée pour différentes valeurs du déphasage non-linéaire $\Delta\phi_0$.

D'après ces courbes, le modèle de Sheik-Bahae semble encore à peu près valide, pour des valeurs de déphasage inférieures à $\pi/2$. L'erreur commise par le modèle de Sheik-Bahae⁴ sur la transmission normalisée des extrema est de +5,6% sur le minimum et de +4,9% sur le maximum, pour un déphasage égal à $\pi/2$. Ceci induit finalement une erreur sur ΔT inférieure à 1%, mais la perte de symétrie de la courbe de transmission normalisée devient très claire. Pour des déphasages supérieurs à $\pi/2$, les deux modèles divergent clairement. Le modèle de Sheik-Bahae devient d'ailleurs faux de manière évidente puisqu'il prévoit des valeurs négatives de la transmission normalisée.

2.4 Etude de matériaux non-linéaires par la méthode de Z-scan

2.4.1 Etude dans des liquides

Expérimentalement, la méthode de Z-scan a largement été utilisée dans le cas de matériaux d'indice non-linéaire élevé, comme par exemple le CS_2 . Ce liquide possède un indice de réfraction non-linéaire particulièrement élevé, d'environ $3 \times 10^{-18} m^2/W$. Dans ce liquide, le comportement non-linéaire provient principalement du mécanisme de réorientation moléculaire, la molécule de CS_2 étant particulièrement polaire. Un grand nombre des études menées utilisent ce liquide, soit pour vérifier la validité d'un nouveau modèle plus général ou adapté à un cas particulier [61], soit pour tester de nouvelles configurations de mesure originales (faisceaux particuliers [62, 63, 64], Z-scan à deux faisceaux et/ou résolu en temps [65, 66, 67, 68]). On recense également des études dans d'autres liquides composés de molécules aromatiques, comme le toluène, dont le comportement

⁴L'erreur est calculée comme $\frac{T[Sheik-Bahae]-T[Samad]}{\Delta T[Samad]}$

non-linéaire rappelle celui du CS_2 .

D'une manière générale, le milieu liquide est souvent utilisé, soit pour l'étude de molécules organiques complexes qui montrent des comportements non-linéaires importants [69, 70, 71], soit pour l'étude du comportement non-linéaire de nanoparticules ou d'agrégats en solution [72, 73, 74, 75]. Ainsi, la méthode de Z-scan a trouvé des applications en chimie, pour suivre l'évolution de réactions chimiques [76, 77] par exemple, ou encore en pétrochimie, pour la mise en évidence de l'agrégation d'asphalte dans des solutions de toluène [78].

2.4.2 Etude de semiconducteurs

En ce qui concerne les solides, de nombreuses études ont été menées dans le $ZnSe$, mais également dans d'autres semiconducteurs comme $AsGa$, $CdTe$ ou $ZnTe$ [40, 65, 79, 67, 80, 81, 82, 83, 84]. La forte non-linéarité de ce type de matériau (de l'ordre de $10^{-17} m^2/W$) est principalement due à leurs propriétés électroniques particulières. Par ailleurs, l'absorption non-linéaire de ces matériaux est remarquablement élevée et provient principalement d'un mécanisme d'absorption à deux photons [28], mécanisme au cours duquel les atomes ou molécules sont excités par l'absorption simultanée de deux photons. Ce mécanisme est un mécanisme non-linéaire du troisième ordre et suit par conséquent la loi 2.1 indiquée au paragraphe 2.2.4. Ce type de mécanisme électronique est très rapide, donc indépendant du régime temporel utilisé (largeur des impulsions). Dans les verres optiques, et pour la plupart des matériaux diélectriques courants et non dopés, ce type de phénomène a beaucoup plus de chance d'avoir lieu pour des longueurs d'onde courtes, c'est à dire au-dessous de $500 nm$ pour atteindre les bandes d'absorption situées dans l'ultraviolet. Dans le cas de semiconducteurs comme le $ZnSe$, les mécanismes électroniques de l'absorption non-linéaire sont plus complexes et dépendent de la génération de porteurs libres par absorption à deux photons, ainsi que de leur recombinaison. Ces mécanismes sont plus lents, de temps de réponse de l'ordre de la nanoseconde. Ce type d'absorption dépend donc fortement du régime temporel utilisé et peut mener, sous certaines conditions, à des comportements non-linéaires d'ordres supérieurs à celui décrit par la relation 2.1. Dans ce type de matériau assez particulier, l'indice de réfraction et l'absorption non-linéaires sont donc très dépendants des conditions expérimentales (gamme d'intensité, durée d'impulsion, longueur d'onde), ce qui rend leur étude plus délicate. L'étude des différentes contributions électroniques dans les semiconducteurs a fait l'objet de plusieurs

études parmi celles qui ont été citées précédemment.

2.4.3 Etude de matériaux particuliers

Quelques études ont également concerné des matériaux très particuliers comme des matériaux photoréfractifs [85, 82, 86, 87, 88] ou plus généralement des matériaux montrant de très fortes non-linéarités comme le chalcogénure As_2S_3 dont l'indice de réfraction non-linéaire a été estimé de l'ordre de $10^{-8} m^2/W$ à $633 nm$ [89].

L'étude de verres dopés présente également beaucoup d'intérêt dans la mesure où ils sont très utilisés en physique des lasers ou en optique guidée. D'autre part, leur comportement non-linéaire peut être contrôlé par la concentration de dopants. Ainsi, plusieurs études ont été menées dans ce sens [11, 10, 9, 90, 8, 91, 92, 93], montrant par exemple que le comportement non-linéaire de verres ou de couches minces dopés par des nanoparticules métalliques peut atteindre de très grandes valeurs et dépend de la concentration et de la forme des nanoparticules.

Toutefois, ce genre d'étude doit être menée avec la plus grande prudence. En effet, certains travaux ont montré que l'irradiation laser peut modifier la taille et la répartition spatiale de nano-agrégats métalliques implantés dans du verre [94, 95]. Ces modifications produisent des variations d'indice et d'absorption linéaires irréversibles qui, en configuration de Z-scan, produisent des courbes de transmission normalisée similaires à celles obtenues habituellement, mais indépendantes de l'intensité du faisceau incident.

En outre, un autre phénomène est connu pour modifier l'absorption des verres non exclusivement constitués de silice, c'est la solarisation [36]. La solarisation désigne l'induction durable d'absorption dans un matériau par illumination. Ce type de phénomène a été observé lors de l'illumination de verres dans l'ultraviolet à l'aide de lasers impulsifs. Les verres ainsi illuminés se colorent et cette coloration se conserve après illumination. Cette modification du matériau peut être réversible en le soumettant à un traitement thermique. Ce genre de comportement a également été observé dans le visible, à $532 nm$ dans des verres borosilicates tels que le BK7. Ce type de solarisation provient alors d'un mécanisme d'absorption à deux photons qui permet alors, par absorption simultanée de deux photons visibles, d'atteindre les bandes d'absorption situées dans l'ultraviolet. Il faut être avisé d'un tel comportement lorsque l'on veut mener une étude de Z-scan dans

des verres dopés et que l'on constate de l'absorption à deux photons.

2.4.4 Etudes spécifiques de l'absorption non-linéaire et comportements singuliers

Pour la réalisation de systèmes limiteurs optiques à absorption ou pour la recherche d'absorbants saturables, la méthode de Z-scan est également employée pour étudier surtout l'absorption non-linéaire. Dans le cas d'un mécanisme d'absorption à deux photons, l'évolution de l'absorption non-linéaire peut être décrite par une loi linéaire en intensité. Dans les matériaux dits "absorbants saturables", l'absorption peut décroître lorsque l'intensité augmente. Leur coefficient d'absorption est couramment décrit à l'aide de deux paramètres : α_0 , le coefficient d'absorption à faible intensité et I_s , l'intensité de saturation. A l'aide d'un modèle à deux niveaux, on montre que le coefficient d'absorption s'exprime alors :

$$\alpha(I) = \frac{\alpha_0}{1 + I/I_s} \quad (2.12)$$

Ce type de comportement s'observe, par exemple dans des milieux organiques [96]. Un tel comportement induit un renversement des courbes de transmission normalisée obtenues habituellement. En effet, dans un absorbant saturable, l'absorption diminue lorsque l'échantillon se rapproche du point de focalisation, induisant une augmentation de la puissance transmise par l'échantillon.

L'utilisation d'un modèle à quatre niveaux peut être nécessaire pour expliquer d'autres comportements complexes. Un tel modèle à quatre niveaux mène à la relation suivante :

$$\alpha(I) = \frac{\alpha_0 I_s + \beta_0 I}{I + I_s} \quad (2.13)$$

où un troisième paramètre β_0 a été introduit. Un tel modèle peut donc mener à une fonction $\alpha(I)$ croissante ou décroissante suivant les valeurs relatives des paramètres α_0 et β_0 . Ainsi, il a été observé dans des couches minces sol-gel dopées avec un colorant, des comportements d'absorption saturable et d'absorption saturable inverse suivant la longueur d'onde utilisée, menant à des courbes de transmission normalisée d'allure, respectivement, renversée et classique [97].

Enfin, dans un colorant comme la rhodamine B, un modèle à cinq niveaux est nécessaire pour décrire le renversement progressif des courbes de transmission normalisée d'un

type de comportement à son inverse lorsqu'on fait varier l'intensité maximale utilisée [98].

Lors des études de Z-scan, tous ces mécanismes d'absorption non-linéaire mènent donc à des comportements complexes de l'absorption non-linéaire et donc à des comportements variés des courbes de transmission normalisée. Il faut donc garder à l'esprit que le comportement de la transmission normalisée décrite au paragraphe 2.2.4 n'est valable, d'une manière générale, que dans le cas du mécanisme d'absorption à deux photons à des intensités relativement faibles.

2.5 Conclusion

A la lumière des études expérimentales et théoriques menées jusqu'à présent, le principe de base de la méthode de z-scan a été explicité. D'après notre culture bibliographique du sujet et de plusieurs constatations faites lors de nos premiers essais, quelques limites de cette méthode ont pu être mises en évidence, afin de nous aider à mettre en place un montage adapté à une mesure sûre et précise de faibles déphasage non-linéaire.

La description des différents modèles développés pour simuler les courbes de transmission normalisée nous fournit des outils théoriques qui permettront de mieux comprendre l'évolution de la transmission normalisée et de prévoir les limites théoriques d'une telle méthode. Ceci va également nous aider à mettre en place le montage le mieux adapté à notre cadre d'étude.

Par ailleurs, la description rapide d'une grande partie des matériaux non-linéaires étudiés par cette méthode nous montre à quel point la méthode de Z-scan a été très largement utilisée ces 10 dernières années. Cependant, la grande majorité des matériaux étudiés présentent des comportements non-linéaires assez importants et la configuration expérimentale majoritairement adoptée permet de rester dans l'approximation d'échantillons fins. Le modèle de faisceau gaussien est également conservé dans une très grande majorité des études citées. D'une manière générale, très peu d'intérêt semble être porté dans une grande partie des études précédemment citées sur la métrologie de la méthode de Z-scan. En particulier, les modèles utilisés restent basés sur l'approximation de faisceau gaussien qui est assez restrictive. Par ailleurs, à notre connaissance, la silice n'a jamais été testée à l'aide de la méthode de Z-scan. En effet, l'indice de réfraction non-linéaire

de la silice est d'environ $3 \times 10^{-20} m^2/W$ [31]. Or, les matériaux testés dans les études précédemment citées ont un indice de réfraction non-linéaire au moins 2 à 3 ordres de grandeur au-dessus de celui de la silice. Une très nette amélioration de la métrologie semble indispensable pour la mise en place d'un montage expérimental permettant une mesure dans la silice avec la méthode de Z-scan.

Chapitre 3

Mise en place de la méthode de Z-scan pour la mesure de faibles indices de réfraction non-linéaire en régime nanoseconde

Le chapitre précédent a permis de se familiariser avec le principe de base de la méthode de Z-scan, ses avantages, ainsi qu'avec quelques unes de ses limites. Les modèles analytiques présentés permettent d'évaluer les possibilités théoriques de la méthode et aideront à utiliser celle-ci dans les meilleures conditions. Dans une optique de métrologie précise de faibles indices de réfraction non-linéaires en régime nanoseconde, nous allons rapidement constater qu'il est nécessaire de parfaitement maîtriser la mise en place d'un tel montage, afin d'avoir, d'une part, la sensibilité suffisante, et d'autre part, pour pouvoir éviter tout artefact de mesure ou mauvaises interprétations des résultats. Ce chapitre a donc pour but de décrire la démarche qui a été suivie pour mettre en place le montage expérimental le plus adapté et maîtriser parfaitement la métrologie de l'indice de réfraction non-linéaire. Cette démarche s'axe autour de quatre points principaux :

- ✓ connaissance du type de matériau testé*
- ✓ détermination de la configuration expérimentale la plus adaptée*
- ✓ connaissance des lasers utilisés et mise en forme*
- ✓ mise en place expérimentale et caractérisation*

3.1 Introduction

Dans l'optique d'une mesure "absolue" précise de l'indice de réfraction non-linéaire, il est indispensable d'avoir un banc de mesure dont chaque paramètre est connu et contrôlé avec précision. Ce type de mesure d'interaction non-linéaire est particulièrement sensible au comportement temporel des impulsions, à la répartition spatiale radiale et longitudinale du faisceau incident, et, d'une manière générale, aux fluctuations des caractéristiques du faisceau incident. La qualité spatiale du faisceau incident doit donc être particulièrement bonne et stable. L'étude en régime nanoseconde contraint à utiliser un laser Nd :YAG à Q-switch. Une bonne connaissance de son fonctionnement, ainsi que de son comportement propre est indispensable pour pouvoir déterminer quel type de montage adopter et pour savoir, plus tard, quels types d'erreurs peuvent être commises sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire.

Dans ce chapitre, après avoir rassemblé quelques données sur les caractéristiques non-linéaires de la silice et des verres silicates, nous allons déterminer la configuration expérimentale à adopter dans notre cadre d'étude. Nous nous attarderons ensuite sur le principe de fonctionnement et les caractéristiques spatio-temporelles du type de laser utilisé, ceci dans le but de connaître les contraintes expérimentales imposées par ce type de laser et adopter une mise en forme du faisceau incident adaptée. Enfin, le montage expérimental développé à l'Institut Fresnel et les méthodes de caractérisation du faisceau incident seront présentés et commentés.

3.2 Indice non-linéaire des verres optiques

Afin de mieux connaître le comportement non-linéaire du type de matériau qui va être étudié ici, et pour nous aider à déterminer la configuration expérimentale adéquate, nous allons faire un rapide bilan des principaux travaux concernant la mesure de l'indice de réfraction non-linéaire dans des verres optiques et plus particulièrement dans les verres silicates. La connaissance de l'indice non-linéaire des verres silicates suscite un grand intérêt depuis longtemps car ces matériaux sont, bien entendu, très utilisés en optique. En particulier, la connaissance précise des variations d'indice de réfraction photo-induites dans ces matériaux est précieuse pour l'étude de la propagation des solitons dans les fibres optiques, ou encore pour l'étude des non-linéarités qui peuvent avoir lieu dans les milieux

amplificateurs laser, pour lesquels les verres silicates dopés sont de plus en plus utilisés.

Nous avons vu, en outre, que ce type de non-linéarité peut jouer un rôle dans le processus d'endommagement laser. Or, les verres silicates comptent parmi les matériaux les plus résistants à l'endommagement laser, et sont dès lors utilisés préférentiellement dans les applications impliquant de fortes densités d'énergie. Dans ce cadre, l'intérêt de bien connaître cette propriété des verres est parfaitement illustrée par le problème de la traversée des hublots de la chambre du laser Megajoule. En effet, ces hublots de plusieurs centimètres d'épaisseur doivent être traversés par un faisceau nanoseconde, triplé en fréquence, et véhiculant une densité d'énergie de plusieurs dizaines de J/cm^2 sur une largeur de quelques dizaines de centimètres. La forte fluence, la forte intensité et la forte puissance d'un tel faisceau se propageant dans une si importante épaisseur de silice rend ce problème particulièrement délicat. Ceci nécessite une parfaite compréhension des multiples phénomènes qui peuvent dégrader la qualité du faisceau, dans le meilleur des cas, ou le matériau lui-même, dans le pire des cas.

3.2.1 Equation empirique de Boling, Glass et Owyong

Dans la plupart des matériaux optiques courants, comme les verres optiques, et des non-linéarités d'origine purement électroniques, l'indice de réfraction non-linéaire est relativement faible et varie de 1 à $20 \times 10^{-20} m^2/W$, d'après l'équation empirique de Boling, Glass et Owyong [31]. Cette relation empirique permet de prédire la valeur de l'indice de réfraction non-linéaire d'un verre optique à partir de ses caractéristiques en linéaire (indice linéaire n_d et nombre d'Abbe ν_d à 587,6 nm). Cette relation est de la forme :

$$\gamma[\times 10^{-20} m^2/W] = 285 \times \frac{(n_d - 1)(n_d^2 + 2)^2}{n_d \nu_d \sqrt{1,52 + \frac{(n_d^2 + 2)(n_d + 1)\nu_d}{6n_d}}} \quad (3.1)$$

A l'aide de cette équation, l'indice non-linéaire de quelques verres optiques est représenté à la figure 3.1. Les verres présentés ici sont des verres silicates fabriqués par Schott. Leur type et leur composition chimique sont explicités dans le tableau 3.1.

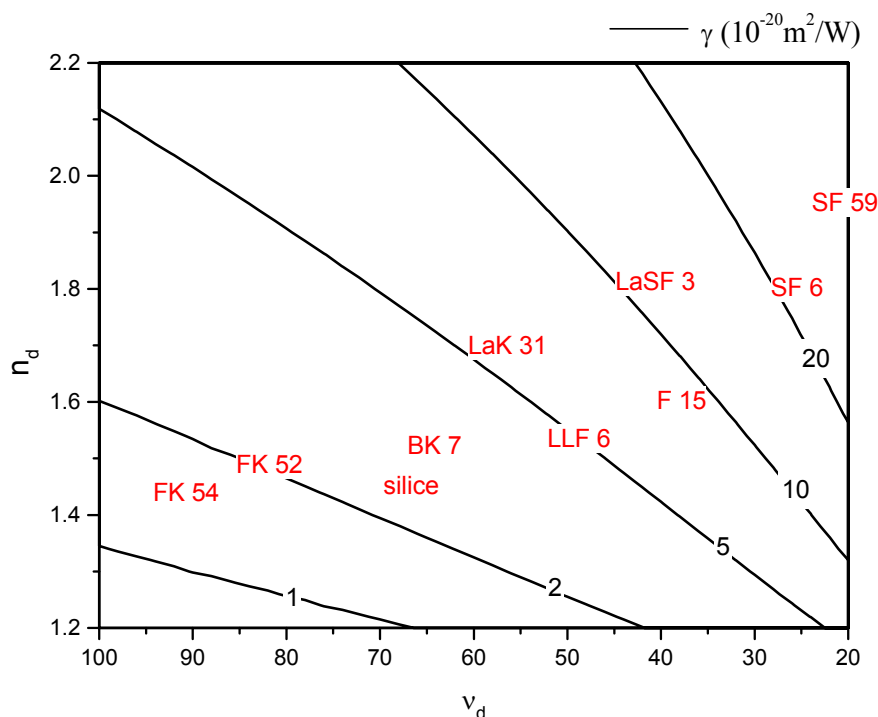


FIG. 3.1 – Représentation dans le plan (ν_d, n_d) de l'indice de réfraction non-linéaire de quelques verres silicates estimé à l'aide de l'équation empirique de Boling, Glass et Owyong (source : réf. [36], verres Schott)

Comme on peut le constater, les verres de type crown, peu dispersifs et d'indice linéaire faible ont un indice non-linéaire faible, de 1 à $5 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$. Les verres de type flint, plus dispersifs et d'indice linéaire élevé, contenant une grande quantité d'oxyde de plomb ont un indice de réfraction non-linéaire plus élevé, de 5 à $20 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$.

Type	Nom	Composition
FK	crown fluor	verre phosphate ou borosilicate à haute teneur en fluor
BK	boro-crown	verre borosilicate
LaK	crown lanthane	verre silico-borate aux oxydes de terres rares
LLF	flint extra-light	verre silicate alcalin avec 20 à 27% de PbO
F	flint	verre silicate alcalin avec 39 à 47% de PbO
LaSF	flint lanthane dense	verre borate ou silicate alcalin aux oxydes de terres rares
SF	flint dense	verre silicate alcalin avec plus de 47% de PbO

TAB. 3.1 – Nomenclature et description des verres Schott présentés (source : réf. [36])

3.2.2 Etudes expérimentales systématiques récentes

Une étude systématique récente [99], concernant 14 verres silicates du type flint a montré un assez bon accord avec l'équation empirique de Boling, Glass et Owyong, particulièrement dans le cas des verres à haute teneur en oxyde de plomb. L'étude concernait donc des verres d'indice de réfraction non-linéaire de 10 à $40 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$. Ces mesures ont été réalisées à l'aide d'une méthode d'interférométrie résolue en temps en régime femtoseconde.

La seule étude systématique recensée utilisant la méthode de Z-scan pour caractériser des verres optiques a été réalisée en 1995 par Kang et al. [100]. Cette étude a concerné des verres spéciaux particulièrement non-linéaires (verres sulfures ou dopés avec des oxydes de métaux lourds). Suivant la longueur d'onde utilisée, l'indice de réfraction non-linéaire des matériaux ainsi testés peut s'étendre de 40 à $13000 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$. C'est également le régime femtoseconde qui a été utilisé dans le cadre de cette étude, afin d'observer uniquement les effets non-linéaires d'origine purement électronique. En outre, les échantillons étudiés dans ce travail présentent un fort indice non-linéaire et la différence de transmission normalisée des courbes présentées indique un fort déphasage non-linéaire. Or, le modèle utilisé pour simuler les courbes de transmission normalisée est celui de Sheik-Bahae, valable dans le cas d'échantillons fins et surtout, d'un déphasage non-linéaire faible (nous verrons plus tard l'effet de mauvaises approximations sur la détermination de l'indice non-linéaire). Ces mesures sont très certainement pertinentes en relatif, mais rien n'est moins sûr en absolu.

3.3 Détermination de la configuration expérimentale adaptée à notre cadre d'étude

3.3.1 Cadre d'étude : autofocalisation et endommagement laser

L'autofocalisation est un des mécanismes qui entrent en jeu dans le processus d'endommagement laser, puisque ce phénomène engendre une concentration de la densité spatiale d'énergie du faisceau. Cette autofocalisation est due à la variation d'indice de réfraction photo-induite dans le matériau considéré. Dans le régime nanoseconde et dans les verres optiques, nous avons également pu remarquer que la variation d'indice de ré-

fraction non-linéaire peut provenir de différents mécanismes qui peuvent apporter chacun une contribution significative.

Les effets purement électroniques sont des mécanismes rapides qui ne dépendent pas du régime temporel utilisé et leur effet sur la variation d'indice est donc uniquement lié à l'intensité du faisceau. Les autres mécanismes (électrostriction, effets thermiques) ont un temps de réponse de l'ordre de la nanoseconde dépendant donc du régime temporel. Ainsi, leur effet est plutôt lié à la fluence du faisceau. Pour estimer le rôle de l'auto-focalisation dans le processus d'endommagement laser en régime nanoseconde, il faut donc effectuer une mesure avec des impulsions nanosecondes et se placer à une fluence proche de la fluence d'endommagement laser du matériau.

L'endommagement laser de la silice a été très largement étudié dans différentes configurations et en fonctions de nombreux paramètres (procédure de test, nombre de tirs, longueur d'onde, température, durée d'impulsion) [17, 36, 20, 101, 102, 103]. Le processus d'endommagement dans le régime nanoseconde est assez complexe et dépend de beaucoup de paramètres, ce qui rend difficile la comparaison de deux mesures issues de laboratoires différents. En particulier, le seuil d'endommagement en surface dépend, par exemple, du type de polissage effectué sur l'échantillon. Dans le régime nanoseconde, le seuil d'endommagement de la silice se situe en moyenne aux alentours de 100 à 200 J/cm^2 dans le volume à 1064 nm, tandis qu'il peut atteindre à peine quelques dizaines de J/cm^2 en face arrière de l'échantillon. Dans une étude [103], dont les conditions expérimentales¹ sont très proches des nôtres, le seuil d'endommagement de plusieurs types de silice a été mesuré et varie de 130 J/cm^2 à près de 400 J/cm^2 .

3.3.2 Problématique de la mesure dans la silice en régime nanoseconde

Nous avons vu que l'indice de réfraction non-linéaire de la silice est estimé à environ $3 \times 10^{-20} m^2/W$ en régime femtoseconde. Pour se situer à un point de fonctionnement proche du seuil d'endommagement de la silice, considérons donc, comme première

¹configuration de Z-scan et balayage, faisceau monomode transverse et longitudinal à 532 nm, durée d'impulsion d'environ 10 ns à mi-hauteur, diamètre au point de focalisation d'environ 15 μm à $1/e^2$

contrainte, une fluence limite de l'ordre de 150 J/cm^2 . Avec des impulsions nanosecondes à profil gaussien de demi-largeur 12 ns à $1/e$, cette dernière fluence mène à un pic d'intensité d'environ 7 GW/cm^2 . D'après la valeur de l'indice non-linéaire de la silice rappelée précédemment, ceci correspond à une variation d'indice maximale dans l'échantillon de l'ordre de 2×10^{-6} . Cette variation d'indice est particulièrement faible et va donc être difficile à mesurer par la méthode de Z-scan.

3.3.3 Méthode de Z-scan et puissance critique

En utilisant le modèle de Hermann et McDuff, nous allons chercher la configuration expérimentale permettant d'atteindre la variation de transmission normalisée la plus élevée possible. Reprenons la définition du déphasage non-linéaire effectif introduit dans un échantillon d'épaisseur $L > z_R$ (voir paragraphe 2.3.3) :

$$\beta = 2 k \gamma I_0 n_0 z_R \quad (3.2)$$

L'intensité crête I_0 sur l'axe optique dépend du rayon du faisceau incident au point de focalisation. Afin d'avoir une condition indépendante de la dimension du faisceau incident, il est pertinent de rappeler que, dans le cas d'un faisceau gaussien de rayon w_0 à $1/e$, l'intensité I_0 et la puissance totale crête du faisceau P sont liées par la relation suivante :

$$P = I_0 (\pi w_0^2) \quad (3.3)$$

Introduisant cette relation dans 3.2 et se souvenant que dans ce cas $z_R = k w_0^2$, il vient :

$$\beta = 8 \pi \frac{n_0 \gamma P}{\lambda^2} \quad (3.4)$$

Cette relation nous montre plusieurs choses intéressantes. Tout d'abord, dans le cas d'un matériau donné, d'épaisseur supérieure à la profondeur de champ du faisceau incident, le déphasage non-linéaire est proportionnel à la puissance maximale des impulsions. En d'autres termes, cela signifie que le déphasage non-linéaire maximal qu'il est possible d'atteindre pour un échantillon donné (n_0 , γ et L fixés) est proportionnel à la puissance incidente. Ce résultat rejoint un résultat bien connu en autofocalisation : le phénomène d'autofocalisation est d'autant plus important que la puissance du faisceau incident est élevée (voir annexe B). Reprenant l'expression de la puissance critique citée au paragraphe 1.4.3 et dans l'annexe B, la relation 3.4 peut s'écrire simplement sous la forme :

$$\beta \approx 4 \times \frac{P}{P_c} \quad \text{avec} \quad P_c = 0,273 \times \frac{(1,22 \lambda)^2}{8 n_0 \gamma} \quad (3.5)$$

La condition de faible déphasage non-linéaire dans le modèle d'Hermann et McDuff est donc équivalente à la condition $P \ll P_c$. Ce résultat indique donc que les variations de transmission normalisée en configuration de Z-scan seront d'autant plus fortes que la puissance du faisceau se rapproche de la puissance critique. Pour avoir des variations de transmission normalisée importantes, il faut donc se rapprocher de la puissance critique. Dans ce cas, le faisceau peut atteindre, à l'intérieur même de l'échantillon, une intensité et une fluence plus élevées, pouvant l'endommager et nous éloigner du point de fonctionnement que nous nous sommes fixé pour mesurer l'indice de réfraction non-linéaire. Par ailleurs, comme ce sera développé plus précisément dans les chapitres 4 et 5, il est préférable d'utiliser la méthode de Z-scan avec des puissances faibles devant la puissance critique. En effet, le comportement de la transmission normalisée risque d'être plus instable, plus sensible aux imperfections du faisceau incident. En outre, l'utilisation de la méthode de Z-scan à des puissances proches de la puissance critique complique la simulation et l'interprétation des résultats, car on utilise alors la méthode dans une zone de non-linéarité².

Ainsi, pour mesurer avec précision l'indice de réfraction non-linéaire, retenons qu'il est préférable que la puissance totale du faisceau soit éloignée de la puissance critique. En outre, puisque nous nous sommes imposés de travailler à des fluences élevées, il est donc préférable d'utiliser un faible diamètre de faisceau. Dans le cas de la silice amorphe, la puissance critique est de l'ordre de 1 MW à 1064 nm et 250 kW à 532 nm. La plus petite durée d'impulsion qui sera utilisée dans cette étude est d'environ 3 ns. Ceci correspond donc dans ce cas à une énergie "critique" de seulement 5 mJ à 1064 nm et 1,2 mJ à 532 nm pour atteindre la puissance critique de la silice. Reprenant la condition de validité du modèle d'Hermann et McDuff $P \ll P_c$, ceci correspond à une condition sur l'énergie $E \ll 5 \text{ mJ}$ à 1064 nm. Pour être suffisamment loin de la puissance critique, nous choisirons par la suite des énergies de l'ordre de 0,5 à 1 mJ.

3.3.4 Détermination de la focalisation optimale

Toujours à l'aide du modèle d'Hermann et McDuff et en ajoutant aux contraintes précédemment citées une épaisseur d'échantillon fixe égale à 5 mm, la perte de signal ΔT lorsque le diamètre du faisceau augmente a été représentée à la figure 3.2. Sur cette même

²Nous verrons ceci plus en détail aux chapitres 4 et 5

figure est représenté parallèlement l'évolution de la fluence sur l'axe optique du faisceau en fonction du rayon du faisceau pour une valeur fixée de l'énergie, typiquement de l'ordre de $0,5 \text{ mJ}$ et une largeur d'impulsion de 15 ns .

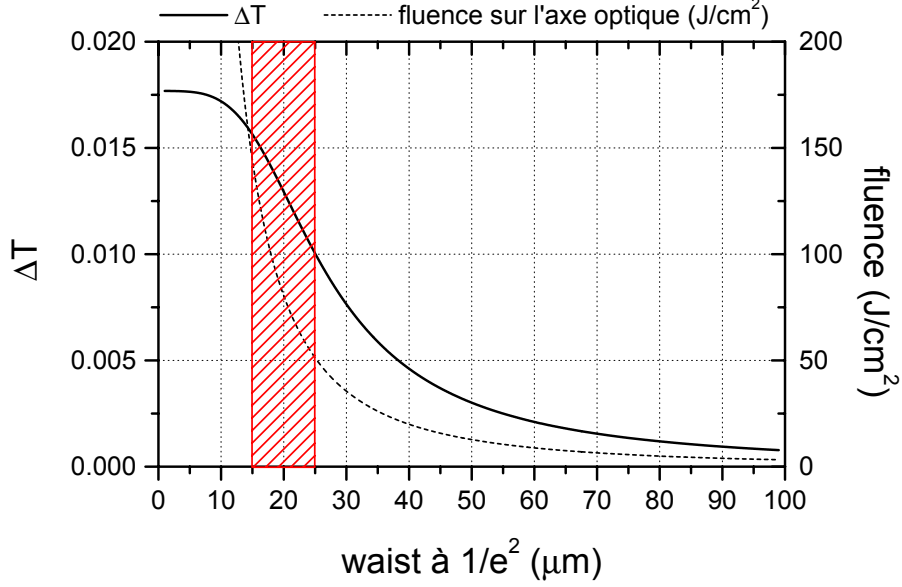


FIG. 3.2 – Evolution du signal ΔT et de la fluence sur l'axe optique en fonction du rayon du faisceau avec $\lambda = 1064 \text{ nm}$, $E = 0,5 \text{ mJ}$, $n_0 = 1,45$, $\gamma = 3 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ et $L = 5 \text{ mm}$

Il est clair sur cette courbe que pour éviter tout endommagement, tout en essayant de garder un signal élevé, il est nécessaire de choisir un rayon à $1/e$ de l'ordre de 10 à $15 \mu\text{m}$.

Dans ces conditions, le signal ΔT_{max} ne dépassera pas 1% , soit une variation de transmission normalisée de $\pm 0,5\%$ autour de sa valeur en l'absence de non-linéarités. Rapprochant cette valeur de la dispersion en énergie des impulsions laser (voir plus loin), il devient clair qu'une voie de référence, parfaitement corrélée avec la voie de signal, doit être utilisée pour éliminer le bruit multiplicatif inhérent à cette méthode.

3.3.5 Conclusion

En résumé, le cadre de cette étude pose un certain nombre de contraintes qui sont résumées dans le tableau 3.2.

Contrainte	Valeur typique
Régime nanoseconde	3 à 10 <i>ns</i> de durée d'impulsion à mi-hauteur
Fluence proche de l'endommagement laser	150 <i>J/cm</i> ²
Faible indice de réfraction non-linéaire	$3 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$
Puissance très inférieure à la puissance critique	implique une énergie de l'ordre de 1 <i>mJ</i>

TAB. 3.2 – Résumé des contraintes expérimentales imposées dans le cadre de cette étude

Pour rester proche des conditions d'endommagement en terme de fluence sans les atteindre et garder un maximum de signal, toutes ces contraintes imposent de travailler avec un faisceau relativement focalisé, de rayon environ égal à une dizaine de microns et dans une configuration où l'épaisseur de l'échantillon est de l'ordre de la longueur de Rayleigh. Dans ces conditions la variation de transmission normalisée reste très faible, de l'ordre de 1%. Il faut donc mettre en place la méthode de Z-scan avec le plus grand soin, car dans ces conditions la méthode de Z-scan va être très sensible aux instabilités du faisceau et à la diffusion par l'échantillon, par exemple.

D'autre part, nous désirons effectuer une mesure absolue de l'indice de réfraction non-linéaire. Tous les paramètres expérimentaux, et tout particulièrement les caractéristiques spatio-temporelles du faisceau incident devront être stables et caractérisées avec précision. Ceci nécessite une bonne connaissance des lasers utilisées, une mise en forme adaptée du faisceau incident, ainsi qu'une bonne connaissance du matériel de caractérisation.

3.4 Principe de fonctionnement et caractéristiques des lasers utilisés

3.4.1 Principe de base des lasers Nd :YAG à Q-switch

Le principe de déclenchement le plus largement utilisé pour obtenir des impulsions laser de l'ordre de 1 à 100 ns est connu sous le nom de Q-switch selon la terminologie anglo-saxonne. Le principe du Q-switch est illustré à la figure 3.3. Initialement, des pertes sont artificiellement introduites dans la cavité du laser alors que commence le pompage du milieu amplificateur. Ainsi, le laser n'oscille pas, permettant à l'inversion de population d'atteindre un niveau très élevé. Brutalement, le niveau des pertes est alors basculé pour atteindre le niveau normal des pertes dans la cavité. Le processus d'oscillation peut alors commencer. Les photons émis commencent à faire quelques aller-retour dans le milieu amplificateur, déclenchant l'émission stimulée d'autres photons et faisant ainsi revenir brutalement la population excitée à son état initial. Il en résulte l'émission d'une impulsion laser de durée pouvant varier de quelques dizaines à quelques centaines de nanosecondes et de puissance extrêmement élevée, pouvant atteindre plusieurs centaines de megawatts. Des détails sur le fonctionnement de tels lasers sont disponibles à l'annexe C, comme par exemple, la présentation plus précise du comportement temporel des impulsions.

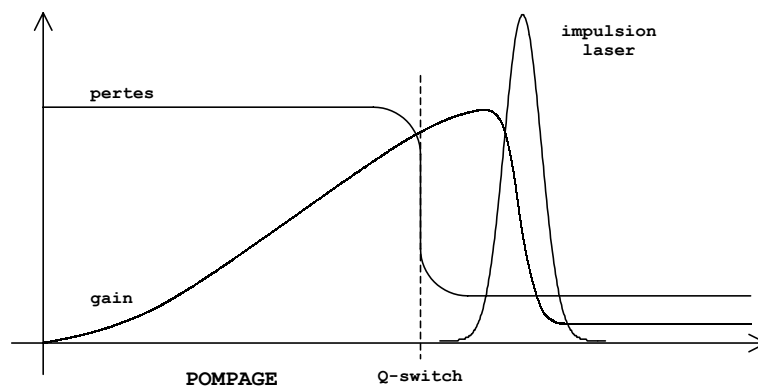


FIG. 3.3 – Principe d'obtention d'impulsions nanosecondes par Q-switch

3.4.2 Caractéristiques générales des lasers utilisés

Deux lasers différents ont été utilisés dans cette étude. Ces deux lasers sont similaires, de type Nd :YAG à Q-switch, pompés par lampes flash et fournissant des impulsions

de l'ordre de quelques nanosecondes de largeur à une cadence maximale de 20 Hz . Ils émettent tous les deux à une longueur d'onde de 1064 nm et sont tous les deux multimodes longitudinaux. Les principales caractéristiques de ces deux lasers sont résumées dans le tableau 3.3.

Ces deux lasers possèdent des caractéristiques équivalentes, mais pourtant ils ne vont pas présenter les mêmes intérêts pour la mise en place d'un montage expérimental de Z-scan. Quelques remarques méritent d'être faites à ce sujet.

Fabriquant	LASER PHOTONICS	BIG SKY LASER TECHNOLOGIES
Energie maximum	$\approx 10\text{ mJ}$	$\approx 50\text{ mJ}$
Stabilité en énergie	$< \pm 2\%$	$< \pm 1\%$
Qualité de faisceau	faiblement multimode	fortement multimode
Durée d'impulsion τ_e	$\approx 9\text{ ns}$	$\approx 3\text{ ns}$
Stabilité en dépointé	bonne	moyenne

TAB. 3.3 – *Caractéristiques générales des lasers utilisés (données mesurées). La durée d'impulsion est mesurée à l'oscilloscope avec une photodiode rapide et définie comme $\sqrt{\pi}\tau_e = \int p(t) dt$, où $p(t)$ représente le profil temporel normé. La stabilité en énergie est estimée à l'aide de l'écart-type à pleine puissance et à 20 Hz*

Le laser de chez LASER PHOTONICS, INC est équipé d'un filtrage spatial intra-cavité qui lui confère une assez bonne qualité de faisceau. En revanche, ce filtrage élimine de nombreux modes dans la cavité ce qui réduit considérablement son énergie. Sans filtrage, ce laser peut fournir des impulsions de 200 mJ (donnée constructeur). Sa bonne qualité de faisceau et son faible dépointé nous permettra une mise en forme de faisceau relativement simple et stable. En revanche, sa faible énergie et sa grande largeur d'impulsion ne permettra pas d'atteindre de très grandes densités de puissance au point de focalisation, ce qui nous obligera à travailler assez proche de la fluence d'endommagement du matériau.

Le faisceau issu du laser de chez BIG SKY LASER TECHNOLOGIES, INC possède une symétrie cylindrique et une répartition de puissance radiale en sortie de laser quasiment rectangulaire. Ce type de profil et la grande énergie en sortie de laser est souvent appréciée pour des applications industrielles de gravure, de micro-perçage ou de traitement de surface. Dans notre cas, ce type de faisceau est plus délicat à mettre en forme et moins

stable à cause du dépointé plus important et des modes transverses nombreux. En revanche, il offre la possibilité de travailler avec des densités de puissances plus élevées, nous permettant de nous éloigner un peu plus de la fluence d'endommagement du matériau.

En outre, ces deux lasers permettent de mesurer l'indice de réfraction non-linéaire pour deux types de régimes très proches, mais avec des largeurs d'impulsion différentes. Ceci peut être intéressant pour constater ou non l'éventuelle présence de mécanismes de réponse temporelle plus lente, comme par exemple l'électrostriction.

Le faisceau peut être doublé en fréquence à l'aide d'un cristal de KTP. Nous pouvons donc travailler aux longueurs d'ondes de 1064 nm et 532 nm . Du fait de la conversion dans le second harmonique, l'énergie maximum sera bien évidemment réduite. Par ailleurs, le champ électrique généré dans le second harmonique varie comme le carré du champ incident. La stabilité en énergie sera donc dégradée, théoriquement multipliée par deux et la durée d'impulsion réduite, théoriquement d'un facteur $\sqrt{2}$, dans le cas d'un profil temporel gaussien.

Enfin, nous parlerons désormais du "laser faiblement multimode" pour désigner le laser de chez LASER PHOTONICS, INC et du "laser fortement multimode" pour désigner celui de chez BIG SKY LASER TECHNOLOGIES, INC, ceci afin de les différencier sur le plan de la qualité spatiale de leur faisceau.

3.4.3 Qualité de faisceau : généralités et estimation

Généralités sur la qualité spatiale d'un faisceau laser

Pour caractériser spatialement un faisceau issu d'un laser et savoir si son évolution spatiale peut être décrite à l'aide du modèle gaussien TEM_{00} , une méthode pratique et très répandue consiste à déterminer son facteur M^2 . Pour cela, il suffit de mesurer son rayon réel w_{0R} à $1/e^2$ au point de focalisation et la demi-divergence réelle θ_{0R} du faisceau. Le facteur M^2 est alors défini par la relation :

$$w_{0R} \times \theta_{0R} = M^2 \frac{\lambda}{\pi}$$

Pour un faisceau gaussien monomode transverse TEM_{00} , le facteur M^2 est égal à 1. Dès que le faisceau contient des modes transverses d'ordre supérieur, il diverge plus vite

pour un rayon à $1/e^2$ égal. Le facteur M^2 est alors supérieur à 1. Ce facteur fournit donc un critère pratique permettant de quantifier la qualité d'un faisceau laser. Dans de nombreuses applications, un faisceau laser ayant un facteur $M^2 < 1,1$ est très souvent assimilé à un faisceau gaussien monomode transverse TEM_{00} .

Pour mesurer le rayon à $1/e^2$ et la divergence, la méthode la plus simple consiste à déplacer une lame (ou une fente) dans le plan transversal du faisceau et à mesurer le flux transmis après la lame (ou la fente). Dans la plupart des cas, cette méthode suffit à déterminer si le faisceau possède une qualité spatiale suffisante pour l'application désirée. Si le facteur M^2 n'est pas trop élevé, il est possible d'utiliser les relations de propagation du faisceau gaussien fondamental, corrigées du facteur M^2 , et ainsi, de pouvoir décrire la propagation du faisceau avec une précision suffisante pour de nombreuses applications. Notons toutefois que ce type de mesure suppose que le faisceau possède une bonne symétrie de révolution et lisse fortement d'éventuelles variations hautes fréquences par convolution avec la fente d'entrée.

Cas du laser faiblement multimode

Dans ces conditions, la divergence du faisceau a été mesurée égale à $0,5\text{ mrad}$ (demi-angle). Pour vérifier la qualité du faisceau, le facteur M^2 a été estimé inférieur à 1,5, à partir de la mesure du rayon du faisceau à la sortie du laser et de sa divergence. Ce genre de valeur est la plupart du temps suffisante pour de nombreuses applications.

Cependant, ce type d'analyse ne permet pas de connaître l'allure et l'évolution du faisceau autour de son point de focalisation, c'est à dire dans la zone où les interactions non-linéaires seront significatives. Une observation plus précise du faisceau, à l'aide d'une caméra CCD a permis de déceler de l'astigmatisme, ainsi que la présence de modes transverses détériorant la qualité du faisceau en champ proche (figure 3.4).

L'état de notre faisceau laser n'est pas assez satisfaisant pour mener une étude de Z-scan correcte et facilement interprétable. En effet, la présence de hautes fréquences spatiales dans le faisceau engendrent, près du point de focalisation, des profils d'intensité très perturbés (du type de celui observé sur la figure 3.4 (a)), ce qui a tendance à détériorer considérablement l'allure des courbes de Z-scan.

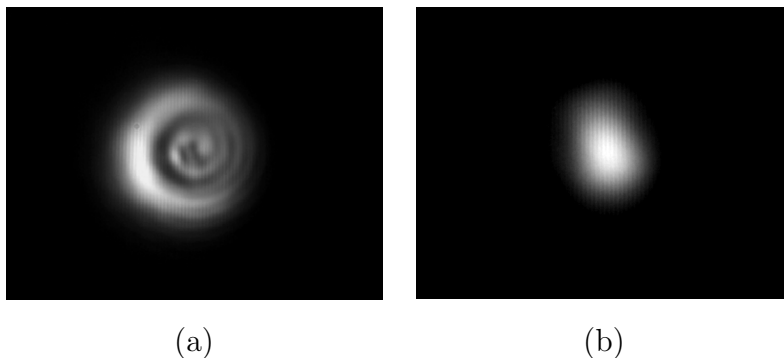


FIG. 3.4 – *Faisceau issu du laser faiblement multimode. Champ proche (a) et à ≈ 1 m du miroir de sortie (b)*

Par ailleurs, l’astigmatisme du faisceau est très gênant : des études théoriques [104, 105] ont montré que l’astigmatisme du faisceau pouvait dégrader la forme, et plus particulièrement la symétrie des courbes de Z-scan. Par ailleurs, les modèles analytiques développés dans ces études ne sont valables que dans le cas d’échantillons fins devant la longueur de Rayleigh du faisceau. L’influence de l’astigmatisme risque d’être pire dans le cas d’échantillons épais et une modélisation en deux dimensions est alors indispensable, ce qui complique considérablement l’exploitation et la pertinence des résultats. Il est donc indispensable d’effectuer un filtrage spatial ainsi qu’une correction de l’astigmatisme du faisceau laser incident.

Cas du laser fortement multimode

Le laser fortement multimode possède, quant à lui, un profil circulaire d’intensité quasi-uniforme au niveau du miroir de sortie (figure 3.5 (a)). En champ lointain, ceci correspond à une répartition spatiale de type ”tâche d’Airy”. Le pic central de cette tâche possède une bonne symétrie circulaire. Le constructeur indique que ce laser possède une bonne qualité de faisceau en champ lointain, c’est à dire que le pic central peut être approximé par une gaussienne. Il est vrai que pour de nombreuses applications une telle répartition en champ lointain est tout à fait satisfaisante et peut, en effet, être approximée par une gaussienne. En revanche, ce faisceau est composé d’un grand nombre de modes transverses d’ordres élevés. Ceci peut être observé clairement sur la figure 3.5 (b), qui peut être vue comme la transformée de Fourier de la répartition spatiale sur le miroir de sortie du laser. Notons que, sur cette prise de vue, la caméra sature au niveau du pic central. Ceci a été fait volontairement pour que l’on puisse distinguer les anneaux de la tâche d’Airy.

Pour des applications où la détermination absolue de la fluence du faisceau sur l'axe optique est nécessaire, il faut tenir compte de la perte d'énergie dans les pieds de la tâche d'Airy, sous peine de commettre des erreurs pouvant atteindre plus de 50%. Par ailleurs, ce type de faisceau diverge bien plus vite qu'un faisceau gaussien et des répartitions spatiales de type annelé sont observées dès que l'on s'éloigne un peu du plan de focalisation. Pour une utilisation en configuration de Z-scan, il est important d'avoir un faisceau de répartition spatiale bien connue et bien contrôlée dans le plan de focalisation, mais aussi de part et d'autre de celui-ci. Là aussi, une mise en forme adaptée du faisceau va s'imposer.

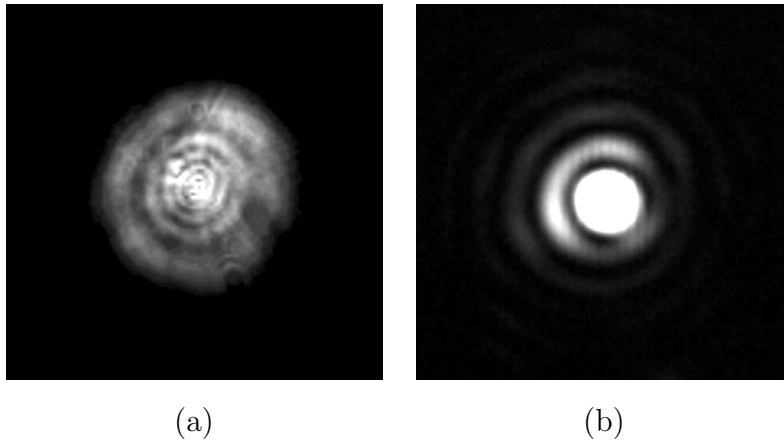


FIG. 3.5 – *Faisceau issu du laser fortement multimode. Champ proche (a) et champ lointain (b) dans le plan focal d'une lentille de focale 500 mm (en montage 2f)*

3.5 Mise en forme et caractérisation du faisceau incident

3.5.1 Filtrage spatial classique

Pour se débarrasser des hautes fréquences spatiales, il est courant d'utiliser un filtrage spatial classique constitué d'un ensemble de deux lentilles positionnées en montage afocal et d'une ouverture circulaire placée au point focal intermédiaire. Dans le cas d'un faisceau de forte puissance (ici $\sim 700 \text{ kW}$), une faible focalisation, par exemple sur une zone de $0,5 \text{ mm}$ de diamètre, engendre des maxima de puissance d'environ 700 MW/cm^2 et une fluence sur l'axe optique de 10 J/cm^2 . Ces fortes valeurs compliquent fortement la

mise en place d'un filtrage spatial classique, nécessitant alors des lentilles de très grande focale, une ouverture très résistante au flux et un filtrage sous-vide pour éviter l'endommagement de poussières au voisinage de l'ouverture. En outre, le choix de l'ouverture de filtrage doit être choisie avec précision en fonction de la focalisation adoptée pour filtrer correctement sans introduire de diffraction.

D'autre part, ce type de filtrage ne résout pas le problème de l'astigmatisme. Dans le cas d'un fort astigmatisme, il est possible d'utiliser des lentilles cylindriques, comme pour corriger les faisceaux issus de diodes laser. Dans le cas d'une faible correction, il est également possible d'utiliser un miroir sphérique hors d'axe [106].

L'association d'un filtrage spatial classique et d'un dispositif de correction de l'astigmatisme complique l'alignement de ce type de montage. Par ailleurs, une telle mise en forme de faisceau doit être entièrement repensée et répétée pour un travail dans le second harmonique. Or, nous souhaiterions mettre en place un montage facilement adaptable lors du passage à 2ω .

3.5.2 Mise en forme particulière

Lorsqu'une bonne qualité de faisceau est indispensable et qu'il est trop difficile d'avoir un faisceau parfaitement gaussien, on préfère souvent travailler avec un faisceau non-gaussien, mais de profil connu et bien défini. Dans beaucoup de cas, un faisceau de type "top-hat", c'est à dire un faisceau à profil radial rectangulaire peut être utilisé. Il est également possible de faire légèrement diffracter le faisceau laser incident pour former une tâche d'Airy en champ lointain. En tronquant cette tâche au niveau de sa première annulation, on obtient un faisceau filtré spatialement et dont l'allure est plus proche de celle d'un faisceau gaussien que dans le cas de faisceau de type "top-hat". La mise en forme de ce type de faisceau est illustrée à la figure 3.6.

Ces deux méthodes ont pour avantage majeur de former des faisceaux possédant une très bonne symétrie de révolution. Dans les deux cas, les hautes fréquences spatiales du faisceau laser initial sont partiellement éliminées. En revanche, ces méthodes réduisent considérablement la puissance maximale du faisceau.

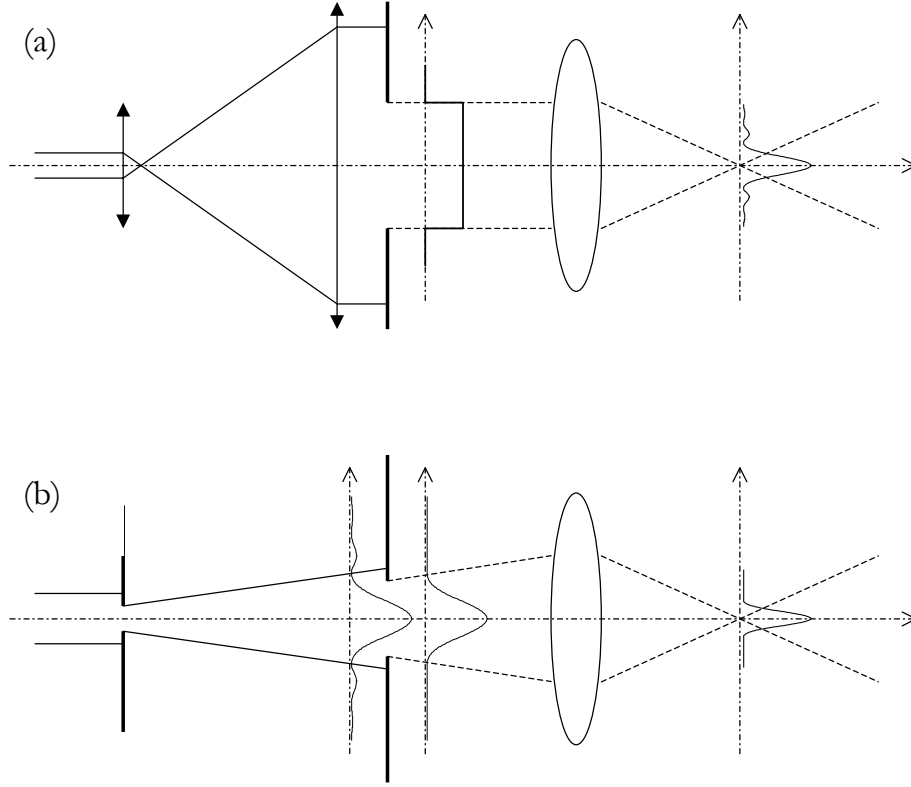


FIG. 3.6 – Mise en forme de faisceau de type "top-hat" (a) et de type "Airy tronqué" (b)

Des études de la méthode de Z-scan ont été réalisées à l'aide de tels faisceaux [62, 63]. Dans ces études, le cas d'échantillons fins a une nouvelle fois été considéré afin de développer un modèle analytique simple, proche du modèle de Sheik-Bahae, mais avec une répartition d'intensité différente au point de focalisation. D'après ces deux études, la sensibilité de la méthode de Z-scan ($\Delta T/\Delta\phi_0$) serait multipliée par 2,5 dans le cas "top-hat" et par 1,5 dans le cas "Airy tronqué". Comme on pouvait s'en douter, le comportement du signal de Z-scan est donc particulièrement sensible au profil spatial du faisceau utilisé. Par ailleurs, notons que d'un point de vue expérimental et numérique, l'utilisation de faisceau de type "top-hat" est plus délicate. En effet, d'un point de vue expérimental ce type de mise en forme est plus difficile à mettre en place et introduit de très hautes fréquences spatiales qui rendent la simulation numérique plus difficile. Notons d'ores et déjà que dans le cas d'échantillon épais, la modélisation risque d'être encore plus délicate puisqu'il est alors nécessaire de bien connaître non seulement le profil spatial radial du faisceau au point de focalisation, mais aussi son évolution de part et d'autre de ce dernier.

Toutes ces considérations nous orientent vers une mise en forme de type "tâche d'Airy

tronquée”. Cette méthode possède de nombreux intérêts par rapport à un filtrage classique. Sa mise en place est simple et nécessite peu de matériel, aucune focalisation n’intervient, la symétrie circulaire du faisceau est quasi-parfaite et enfin, lors de la conversion de fréquence dans le second harmonique, il faudra seulement réadapter le second diaphragme au nouveau diamètre du pic central de la tâche d’Airy. En contrepartie, un tel filtrage réduit fortement la puissance du faisceau incident. De plus, la propagation d’un tel faisceau ne peut plus être décrite par le modèle gaussien, ce qui nécessite une simulation adaptée.

3.5.3 Mise en forme et caractérisation du faisceau issu du laser faiblement multimode

Mise en forme

A partir de l’image du faisceau obtenue à 1 m de la sortie du laser (figure 3.4 (b)), la répartition d’amplitude avant le premier diaphragme a pu être représentée à la figure 3.7.

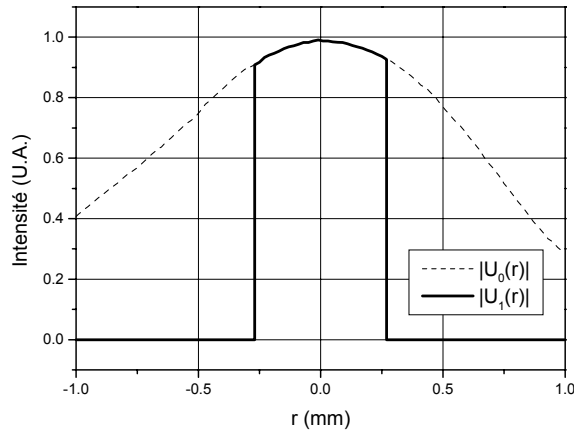


FIG. 3.7 – Module de l’amplitude avant ($|U_0(r)|$) et après ($|U_1(r)|$) le premier diaphragme à 1ω

La symétrie circulaire du premier diaphragme a été contrôlée et son rayon mesuré au microscope. Le rayon vaut ainsi $a_1 \simeq 0,27 \text{ mm}$. En rapprochant cette mesure de celle du profil spatial du faisceau à cet endroit, l’approximation d’une amplitude constante avant le diaphragme semble justifiée. Par ailleurs, le dépointé du laser est ici particulièrement faible, pour ainsi dire quasiment négligeable. Ceci a pu être constaté en remarquant que les fluctuations d’énergie avant et après le diaphragme sont du même ordre.

La mise en forme du faisceau incident dans ce cas est représentée schématiquement à la figure 3.8. Après le premier diaphragme, le faisceau diffracte sur une distance d'approximativement 1 m formant une tâche d'Airy possédant une très bonne symétrie circulaire et des annulations bien marquées. Le diamètre de la tâche centrale est de $5,5\text{ mm}$ à 1ω et $2,8\text{ mm}$ à 2ω . Le faisceau est ensuite focalisé à l'aide d'une lentille de distance focale égale à 100 mm .

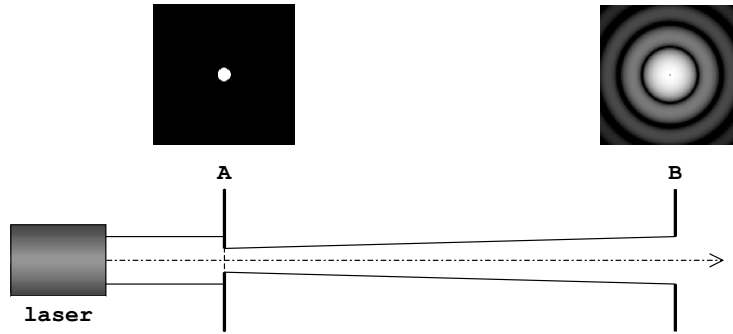


FIG. 3.8 – Mise en forme du faisceau incident dans le cas du laser faiblement multimode

Caractérisation

Expérimentalement, un facteur M^2 de 1,3 à 1,4 a été mesuré dans le cas de notre faisceau incident de type "Airy tronqué". Ceci signifie que son comportement spatial est assez proche de celui d'un faisceau gaussien. Ce genre de faisceau contient donc très peu de modes transverses, ce qui simplifiera la modélisation. Il n'est pas rare que pour des lasers impulsionsnels de type Nd :YAG à Q-switch, des facteurs M^2 de l'ordre de 10 soient atteints si un filtrage spatial intra-cavité n'est pas mis en place. C'est souvent le cas si l'on désire privilégier avant tout la puissance du laser. Dans notre cas, le faisceau incident possède donc une qualité spatiale relativement bonne. En revanche, pour de telles valeurs de M^2 , il est évident que les relations qui permettent de décrire la propagation d'un faisceau gaussien TEM_{00} ne seront pas valables, même corrigées du facteur M^2 , comme nous le verrons plus tard.

Afin de mesurer le profil réel du faisceau incident plus finement, il est nécessaire de se munir d'un système d'imagerie adapté. Dans ce but, le dispositif expérimental choisi comprend une caméra CCD, une bague allonge et un objectif. Il est ainsi possible de vérifier

la symétrie circulaire du faisceau et de mesurer la répartition spatiale d'énergie du faisceau dans la zone où l'intensité est élevée et où l'interaction non-linéaire sera significative.

Le dispositif d'imagerie a été étalonné à l'aide d'une mire graduée par pas de $10\ \mu m$. Ainsi, le dispositif complet permet d'avoir une résolution sur la caméra de $0,7\ \mu m$ par pixel. Le faisceau possède par ailleurs un diamètre à $1/e^2$ minimal d'environ $30\ \mu m$ et sera donc correctement échantillonné. A l'aide de ce dispositif expérimental, il est possible d'observer l'évolution du profil spatial du faisceau le long de l'axe optique dans la zone de focalisation (figure 3.9).

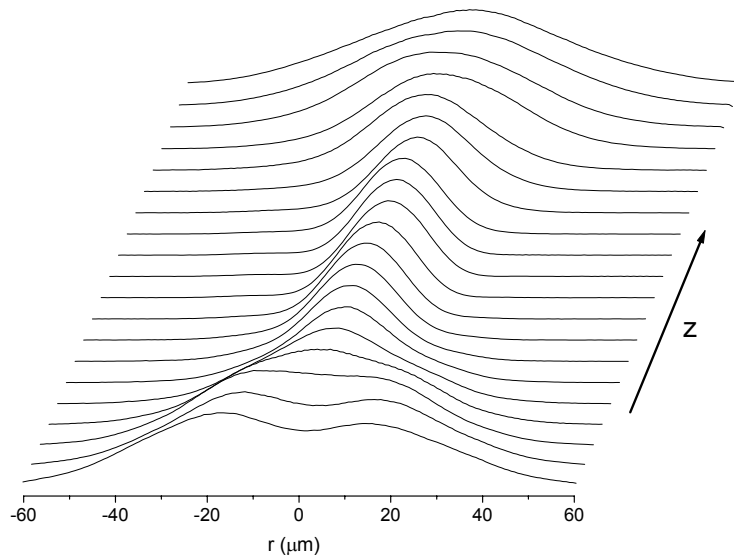


FIG. 3.9 – *Evolution du profil spatial le long de l'axe optique à 1ω (profils expérimentaux recalés à 1 pour $r = 0$)*

Pour mesurer le profil du faisceau à plusieurs positions longitudinales autour de la zone de focalisation, l'acquisition d'une vingtaine d'images est réalisée tous les 200 ou 250 μm . Chaque image obtenue est corrigée du bruit de fond électronique et de la lumière diffusée par les éléments du montage, et recentrée par rapport à son barycentre, puis divisée par la somme des niveaux de gris de tous ses pixels. Ainsi, l'intégrale bidimensionnelle de toutes les images est identique. Cette intégrale bidimensionnelle est proportionnelle à l'énergie totale véhiculée par chaque impulsion. Il est en effet plus logique d'étudier le profil du faisceau en fonction de z à énergie totale constante : ceci permettra notamment de tracer l'évolution de la fluence du faisceau sur l'axe optique en fonction de z .

D'autre part, en utilisant directement les images recalées par rapport à la somme des niveaux de gris de tous les pixels, il est possible de tracer l'évolution des maxima d'intensité le long de l'axe optique (figure 3.10).

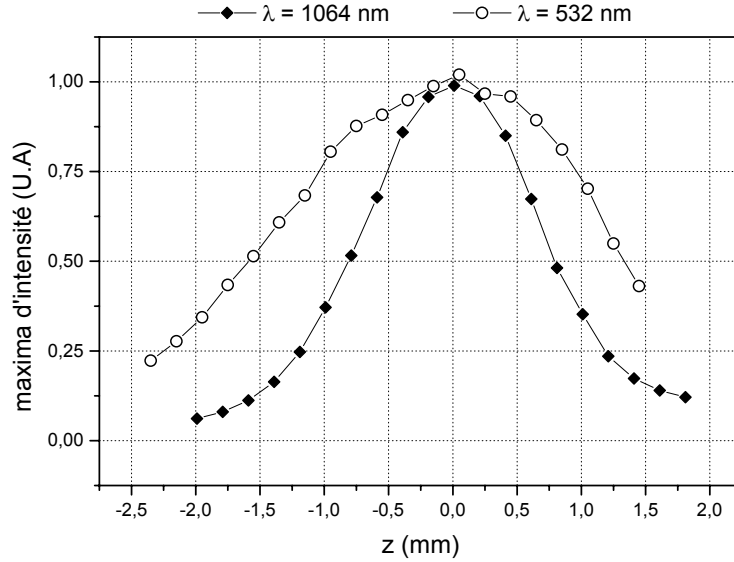


FIG. 3.10 – Evolution des maxima d'intensité le long de l'axe optique à 1064 nm et 532 nm

Ces courbes sont particulièrement intéressantes quantitativement puisqu'elles fournissent une valeur précise de la profondeur de champ du faisceau réel (défini comme la largeur à mi-hauteur des courbes précédentes). Dans le cas d'un faisceau gaussien, cette valeur vaut deux fois la longueur de Rayleigh du faisceau. Pour un faisceau gaussien de même rayon (ici $\sim 15 \mu m$ à $1/e^2$), cette largeur à mi-hauteur vaut théoriquement 1,3 mm à 1064 nm et 2,6 mm à 532 nm, soit légèrement inférieure à ce qui est observé réellement, bien qu'un faisceau de type "Airy tronqué" diverge plus vite qu'un faisceau gaussien. Ces deux types de faisceau n'ont pas le même comportement en champ proche. Ceci sera étudié plus en détails ultérieurement car cette différence de comportement influence très fortement l'allure des courbes de transmission normalisée et peut conduire à d'importantes erreurs si le modèle gaussien est conservé.

Nous verrons par ailleurs que les simulations numériques du faisceau incident sont en parfait accord avec ce qui a été mesuré expérimentalement. En outre, une parfaite répétabilité de l'allure spatiale du faisceau a pu être constatée caractérisation après caractérisation.

3.5.4 Mise en forme et caractérisation du faisceau issu du laser fortement multimode

Mise en forme

Dans le cas du laser fortement multimode, il a été tout d'abord constaté que le faisceau reste quasi-rectangulaire et très perturbé (voir image 3.5 (a)) sur une distance supérieure à $1,5\text{ m}$, c'est à dire dans la zone où, pratiquement, le premier diaphragme était placé précédemment. Le profil perturbé du faisceau à cet endroit et le fort dépointé engendrent d'énormes fluctuations d'énergie après le diaphragme, parfois supérieures à $\pm 20\%$! Ceci n'est pas acceptable pour mener des études de Z-scan correctes.

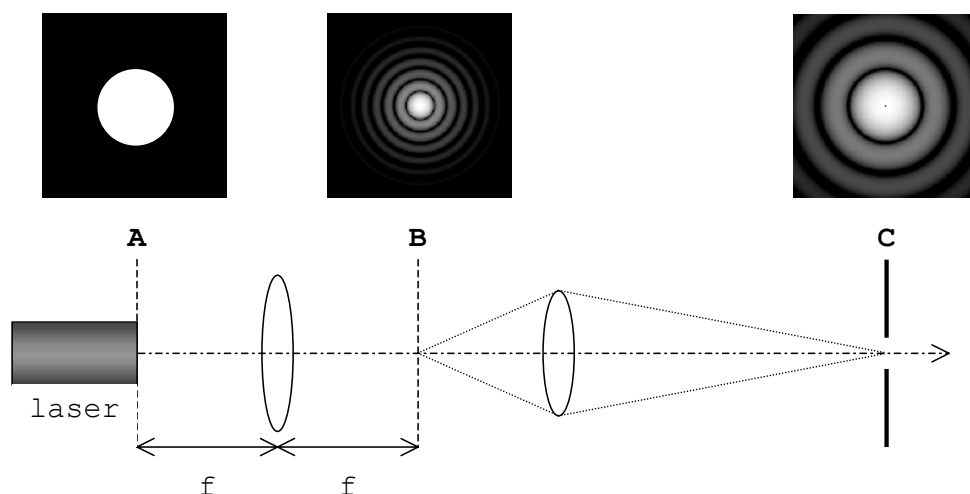


FIG. 3.11 – Mise en forme du faisceau incident dans le cas du laser fortement multimode

Pour mettre en forme le faisceau issu du laser fortement multimode, nous allons donc procéder légèrement différemment en utilisant le fait que le faisceau en champ proche possède un profil quasi-rectangulaire. En effet, en utilisant une lentille de grande focale disposée en montage $2f$ à la sortie du laser, on forme dans son plan focal image, une répartition d'amplitude proportionnelle à la transformée de Fourier de la répartition d'amplitude à la sortie du laser, c'est à dire une tâche d'Airy (voir figure 3.11). Celle-ci est ensuite agrandie à l'aide d'un montage approprié pour obtenir enfin une tâche d'Airy suffisamment grande pour être tronquée avec précision par le deuxième diaphragme.

Malgré un léger astigmatisme résiduel et un peu de dépointé sur le deuxième diaphragme, il est ainsi possible d'obtenir un faisceau correct, possédant un comportement

très proche de celui d'un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée". Contrairement à la méthode précédente, l'énergie disponible après le second diaphragme est beaucoup plus élevée. Cette méthode de filtrage permet en effet de réduire fortement le nombre de modes transverses du faisceau sans pour autant perdre inutilement de l'énergie (théoriquement pas plus que l'énergie contenue dans les modes éliminés). Ceci n'était pas le cas avec l'autre méthode où une grande quantité d'énergie est stoppée par le premier diaphragme.

Dans le cas d'un laser de profil spatial radialement quasi-rectangulaire, cette façon de procéder est donc particulièrement intéressante, car elle permet de débarrasser le faisceau d'un grand nombre de modes de fréquences spatiales élevées et d'obtenir un faisceau de profil spatial connu et bien contrôlé sans trop réduire la puissance du faisceau incident.

Caractérisation

De la même façon, le faisceau ainsi mis en forme a été caractérisé après l'objectif de focale 100 mm . Quelques images du faisceau autour du point de focalisation permettent de constater le léger astigmatisme résiduel (figure 3.12). Mis à part cette légère aberration, la figure 3.12 permet de constater que la qualité du faisceau aux alentours de son point de focalisation est assez bonne.

Par ailleurs, tout comme dans le cas du laser faiblement multimode, l'évolution des maxima d'intensité a été représentée à la figure 3.13 à 1064 nm et 532 nm . Le profil à 532 nm semble un peu plus perturbé et il ne sera pas toujours très évident de simuler correctement ce type d'évolution. Notons que dans le cas de ce laser, l'évolution du profil spatial n'est pas parfaitement répétable. Les dérives du laser fortement multimode nous obligent à réaligner légèrement le faisceau avant chaque mesure. L'évolution du faisceau doit donc être contrôlée pour chaque mesure et les paramètres de simulation doivent être retouchés à chaque fois pour simuler au mieux l'évolution du faisceau incident. La figure 3.13 représente ici deux mesures effectuées l'une après l'autre avec et sans cristal doubleur.

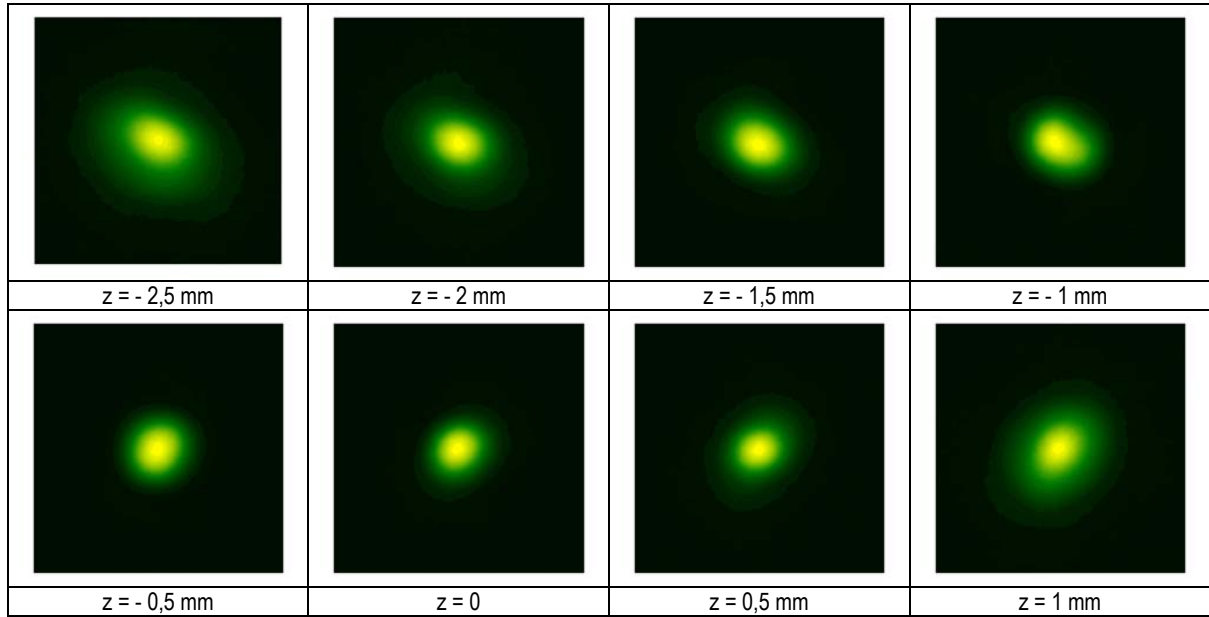


FIG. 3.12 – *Allure du faisceau incident de part et d'autre du point de focalisation (images obtenues à 532 nm, où la mise en forme est plus délicate)*

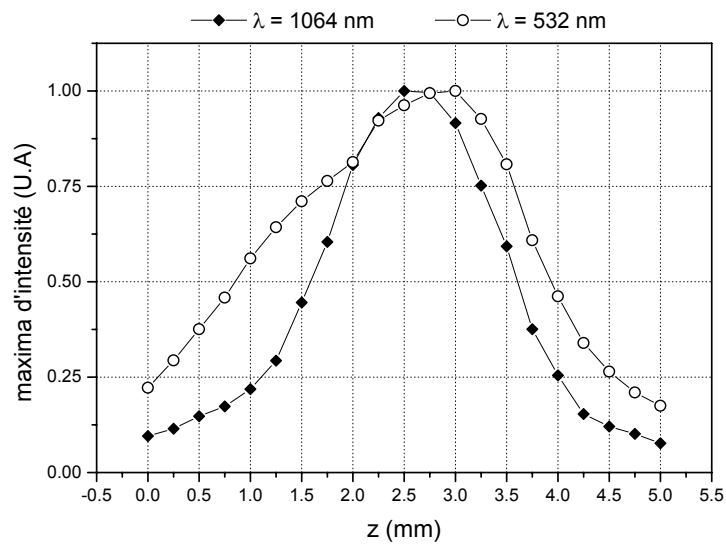


FIG. 3.13 – *Evolution des maxima d'intensité le long de l'axe optique à 1064 nm et 532 nm*

3.6 Mise en place expérimentale et caractérisation

3.6.1 Energie et stabilité en énergie

Mesure de l'énergie

La mesure de l'énergie totale de chaque impulsion est réalisée à l'aide d'un pyromètre particulièrement adapté à des mesures absolues de faibles énergies à 1064 nm . Les principales caractéristiques de ce pyromètre sont résumées dans le tableau 3.4.

Energie minimum mesurable	$2\text{ }\mu J$
Calibres	$20\text{ }\mu J$ à 10 mJ
Bruit sur le plus faible calibre	$0,3\text{ }\mu J$
Précision sur l'étalonnage à 1064 nm	$\pm 3\%$
Erreur additionnelle dans le visible	$\pm 4\%$

TAB. 3.4 – *Caractéristiques générales du pyromètre (données constructeur)*

Cas du laser faiblement multimode

A l'aide de cet appareil, l'énergie totale moyenne des impulsions est mesurée après la lentille de la voie signal. Aucune dérive supérieure à 1% n'a été constatée sur l'étude de plusieurs milliers d'impulsions consécutives. Le tableau 3.5 résume les caractéristiques énergétiques du faisceau incident. Le laser est toujours utilisé à pleine puissance pour éviter de changer les conditions de pompage du milieu amplificateur et ainsi changer la largeur des impulsions nanosecondes.

longueur d'onde	énergie moyenne	fluctuations (écart-type)	erreur d'étalonnage
1064 nm	$740\text{ }\mu J$	$\pm 10\text{ }\mu J$	$\pm 3\%$
532 nm	$290\text{ }\mu J$	$\pm 11\text{ }\mu J$	$\pm 7\%$

TAB. 3.5 – *Caractéristiques énergétiques du faisceau incident (étude sur ~ 2000 impulsions)*

Du fait du filtrage spatial adopté, l'énergie maximale est donc fortement réduite pour maintenant atteindre une valeur de l'ordre de 1 mJ à 1064 nm . Par ailleurs, la dispersion en énergie des impulsions nanosecondes du laser est représentée à la figure 3.14.

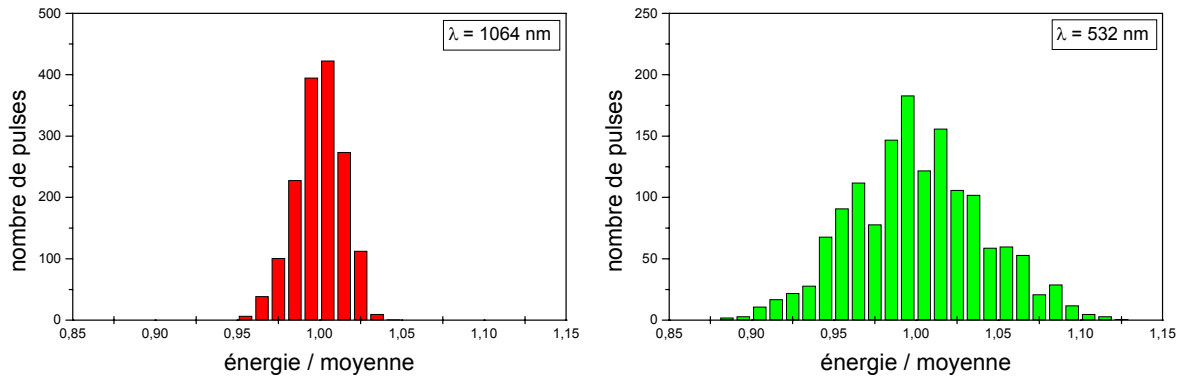


FIG. 3.14 – *Dispersion en énergie à 1ω (1064 nm) et 2ω (532 nm)*

L'énergie des impulsions est stable à $\pm 1,5\%$ près en écart-type à 1ω et $\pm 4,5\%$ à 2ω . La conversion de fréquence dans le second harmonique est un phénomène quadratique qui, par conséquent, a tendance à multiplier par deux les fluctuations en énergie du faisceau. Ce phénomène est encore pire en pratique car la stabilité du phénomène de conversion de fréquence est également liée à la stabilité d'autres paramètres, comme la polarisation, par exemple.

Ces fluctuations vont limiter le signal minimum qui pourra être détecté en terme de variation de transmission normalisée.

Cas du laser fortement multimode

Le filtrage spatial adopté dans le cas du laser fortement multimode permet d'avoir accès à une énergie beaucoup plus forte. Il est possible d'accéder à des énergies de l'ordre de 10 mJ à 1ω . En pratique, nous n'utiliserons que des énergies de l'ordre du millijoule, d'une part pour rester éloigné de la puissance critique et d'autre part pour ménager certains éléments du montage et éviter tout endommagement.

L'étude de la stabilité en énergie du laser fortement multimode mis en forme a permis de constater qu'il est préférable de travailler à pleine puissance, non seulement pour conserver une largeur d'impulsion toujours identique et la plus faible possible, mais également parce que le laser est beaucoup moins stable pour une puissance de pompage intermédiaire, notamment en terme de dépointé. La figure 3.15 représente la dispersion en énergie des impulsions lorsque les lampes flash sont alimentées à mi-puissance.

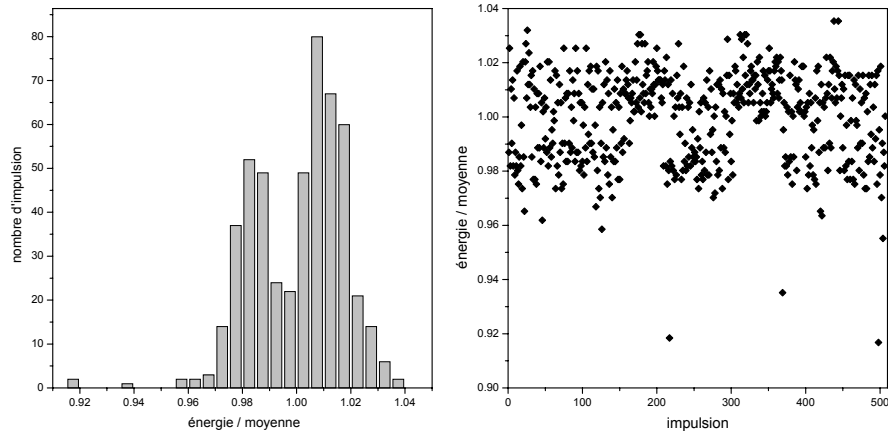


FIG. 3.15 – *Dispersion en énergie à 1ω et évolution de l'énergie des impulsions en fonction du temps (à 15 Hz). Le laser est utilisé à mi-puissance.*

A première vue, il est clair que ce laser fluctue beaucoup plus que le laser faiblement multimode. Par ailleurs, ce laser semble adopter un comportement bi-stable. Son énergie oscille entre deux valeurs sur des plages d'une, voire plusieurs centaines d'impulsions, c'est à dire sur des durées de 5 à 10 s. Ce type de comportement est assez gênant, mais son amplitude ne dépasse pas $\pm 2\%$ en écart-type.

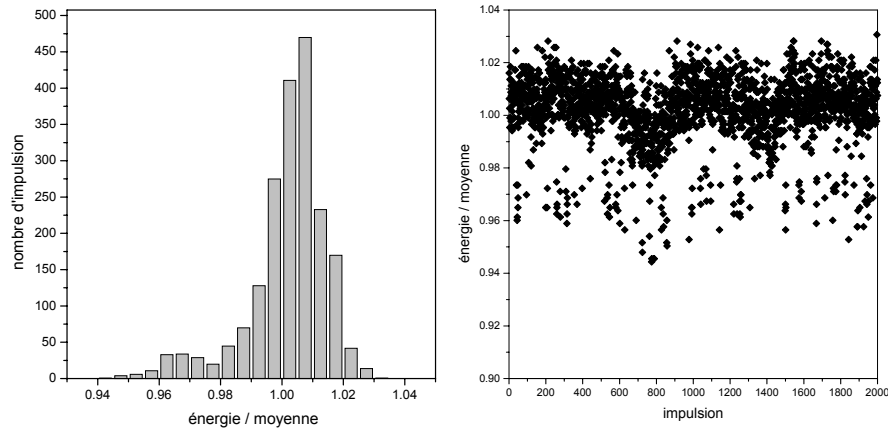


FIG. 3.16 – *Dispersion en énergie à 1ω et évolution de l'énergie des impulsions en fonction du temps (à 10 Hz). Le laser est utilisé à la puissance maximum.*

A pleine puissance et à 10 Hz , ce phénomène est légèrement réduit, mais il subsiste encore quelques décalages momentanés de l'énergie (figure 3.16). Enfin, à 532 nm , ce phé-

nomène disparaît complètement car il est noyé dans les fluctuations globales accentuées par la conversion de fréquence (figure 3.17).

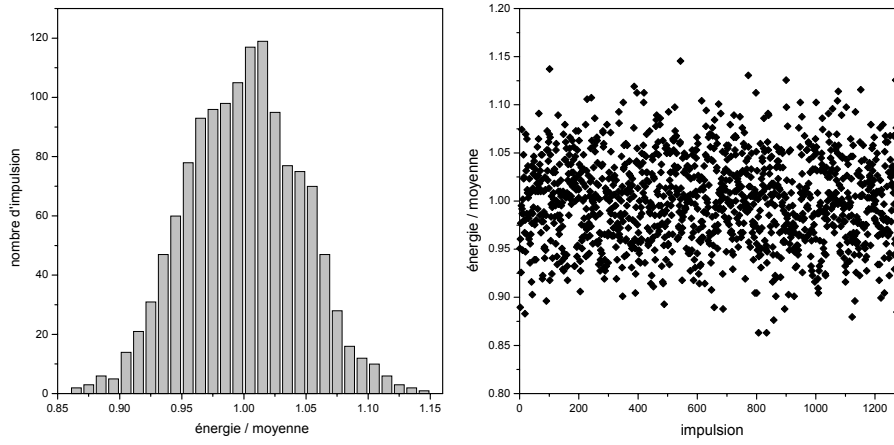


FIG. 3.17 – *Dispersion en énergie à 2ω et évolution de l'énergie des impulsions en fonction du temps (à 10Hz). Le laser est utilisé à la puissance maximum*

Il sera tout de même préférable de travailler à pleine puissance et il est donc nécessaire d'utiliser des densités pour réduire l'énergie du faisceau, ainsi qu'une lame $\lambda/2$ suivie d'un polariseur pour pouvoir encore réduire et ajuster avec précision l'énergie du faisceau.

Dans ces conditions, l'énergie des impulsions fluctue de $\pm 1,5\%$ en écart-type à 1064 nm et de $\pm 5\%$ à 532 nm .

3.6.2 Montage expérimental

A la lumière des considérations précédentes, le banc de métrologie automatisé de l'indice de réfraction non-linéaire que nous avons développé à l'Institut Fresnel, est représenté à la figure 3.18.

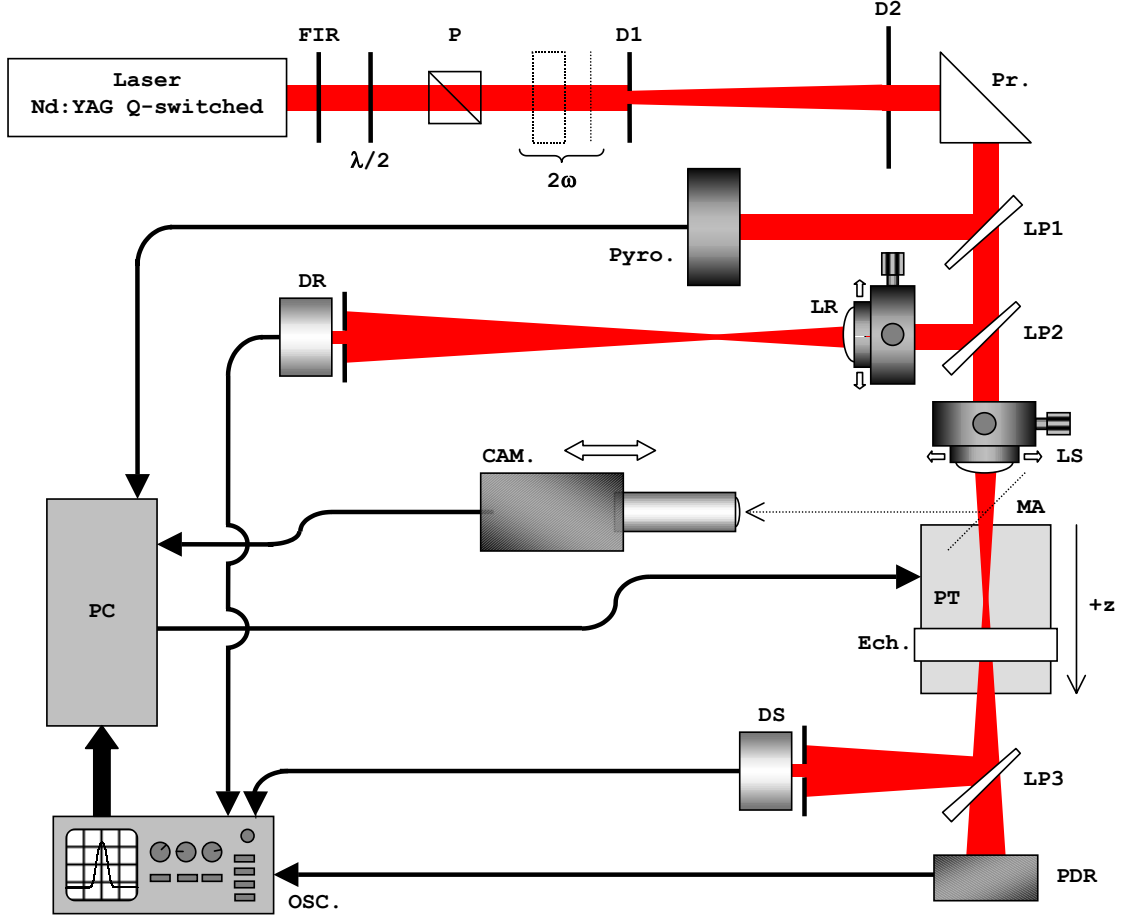


FIG. 3.18 – FIR : filtre coupe visible, $\lambda/2$: lame demi-onde à 1064nm, P : polariseur, 2ω : cristal de KTP et filtre coupe IR (pour les mesures à 2ω), D1, D2 : diaphragmes pour filtrage spatial, Pr. : prisme, LP1, LP2, LP3 : lames prismatiques, Pyro. : pyromètre, LR, LS : lentilles ($f' = 100\text{ mm}$) sur support X-Y à vis micrométriques, MA : miroir amovible pour l'étude du faisceau, CAM. : camera CCD et objectif sur platine de translation, PT : platine de translation motorisée commandée par PC, Ech. : échantillon mobile, DR, DS : photodiodes de la voie de référence et de la voie signal, PDR : photodiode rapide pour la mesure du profil temporel, OSC. : oscilloscope, PC : ordinateur

Notre montage expérimental est constitué d'un des deux lasers Nd :YAG à Q-switch qui ont été décrits précédemment. Le faisceau issu de ce laser traverse un filtre ne laissant passer que la lumière infrarouge, afin d'éliminer la lumière issue des lampes flash. Le faisceau traverse ensuite une lame demi-onde et un polariseur de type Glan-Thompson possédant une haute tenue au flux et permettant un taux d'extinction très élevé, ce qui est très appréciable pour mettre en forme un faisceau parfaitement polarisé rectilignement. Rappelons, en effet, que la polarisation a une influence sur le comportement non-linéaire de l'échantillon. Le polariseur permet d'imposer la polarisation du laser, qui est choisie dans un plan perpendiculaire au plan de la figure 3.18. Ainsi, les réflexions sur les différents éléments du montage se feront en polarisation s (champ électrique perpendiculaire au plan d'incidence). La lame demi-onde permet alors de pivoter la polarisation du laser et ainsi régler la puissance du faisceau, sans changer la polarisation. Un cristal de KTP peut être placé dans le faisceau à ce stade, afin de convertir une partie de la puissance du faisceau dans le second harmonique. Un filtre permettant de couper l'infrarouge est alors utilisé pour éliminer la lumière incidente du laser dans le premier harmonique.

Le faisceau est ensuite mis en forme comme il a été expliqué plus haut. Seul le cas de la mise en forme du laser faiblement multimode a été représenté à la figure 3.18. Cette mise en forme, de type "tâche d'Airy tronquée" est réalisée à l'aide de deux diaphragmes D1 et D2. Le faisceau est ensuite renvoyé à 90° à l'aide d'un prisme en réflexion totale. Cette solution a été choisie car elle présente une meilleure tenue au flux que la solution précédemment mise en place, utilisant un miroir en argent protégé.

Une première lame prismatique LP1 effectue un premier renvoi de faisceau sur un pyromètre qui permet de mesurer l'énergie des impulsions pendant chaque expérience. Une seconde lame prismatique LP2 permet de compenser la déflexion du faisceau induite par la première lame et constitue un second renvoi qui permet de mettre en place la voie de référence.

Les deux voies (signal et référence) sont ensuite mises en place en utilisant deux lentilles de silice identiques LR et LS. Ces lentilles sont placées sur des supports réglables en X et en Y par des vis micrométriques, afin de permettre un réglage très fin de l'alignement des faisceaux référence et signal et permettre une maximisation de la corrélation entre les voies signal et référence. Les deux voies sont, en outre, dotées de deux diaphragmes

disposés en champ lointain et centrés sur l'axe optique du faisceau. Deux photodiodes au silicium identiques sont disposées derrière ces diaphragmes. Le faible diamètre de la cellule en silicium de ces photodiodes permet d'avoir un temps de réponse assez rapide ($\sim 3\text{ ns}$). Ces photodiodes sont reliés à un oscilloscope numérique de grande bande passante (500 MHz). Le signal qui est mesuré et transmis au programme d'acquisition du PC correspond à l'aire des impulsions mesurée à l'oscilloscope. Ce signal est donc proportionnel à l'énergie transmise par les diaphragmes.

Un miroir amovible permet un renvoi du faisceau vers notre système d'imagerie du faisceau, constitué d'un objectif, d'une bague allonge et d'une caméra CCD installée sur une platine de translation micrométrique. Ainsi, nous pouvons étudier le profil spatial du faisceau avec une bonne résolution en Z autour du point de focalisation.

L'échantillon est placé sur une platine de translation équipée d'un moteur pas-à-pas permettant d'avoir une résolution de $10\text{ }\mu\text{m}$ par pas en Z. Cette platine permet un déplacement de l'échantillon sur une étendue totale de 50 mm . Le moteur de la platine est commandé par le PC et l'oscilloscope numérique est relié, par un port IEEE au PC. Ainsi, l'acquisition des courbes de transmission normalisée est entièrement automatisée.

Une troisième lame prismatique LP3 est placée après l'échantillon pour renvoyer le faisceau sur le diaphragme et la photodiode de la voie signal. Enfin, une photodiode rapide, de bande passante égale à 25 GHz est placée dans le faisceau de la voie de signal, afin d'étudier également le profil temporel des impulsions in-situ.

La grande originalité de ce banc de mesure est qu'il a été conçu en poursuivant simultanément les buts suivants :

1. mettre en forme un faisceau incident filtré spatialement, stable et de bonne symétrie circulaire en régime nanoseconde
2. ne surtout pas dégrader la qualité du faisceau après mise en forme
3. mesurer de faibles variations de transmission normalisée
4. permettre une caractérisation in-situ simple des paramètres du faisceau incident (énergie, profil spatial radial et longitudinal et profil temporel)

Pour répondre aux contraintes imposées par le premier point, nous avons opté pour la mise en forme de type "tâche d'Airy tronquée", déjà largement explicitée précédemment.

Pour répondre aux contraintes posées par le deuxième point, nous avons tenté de limiter le plus possible la quantité d'optiques traversées par le faisceau et, partout où cela était nécessaire, des lames prismatiques ont été utilisées pour éviter tout problème d'interférence. Les interférences induites lors des renvois pourraient avoir un effet catastrophique sur le phénomène d'autofocalisation. En effet, si le faisceau est modulé par des franges d'interférences parallèles, cette modulation, aussi légère soit-elle, peut très bien s'accroître au cours de la propagation en milieu non-linéaire (autofocalisation à petite échelle) et perturber l'interprétation des courbes de transmission normalisée. Notons que la lame prismatique LP1 est introduite juste avant LP2 afin de compenser la déflexion du faisceau et éviter d'introduire de l'astigmatisme.

Le problème posé par le troisième point a été résolu en choisissant une configuration expérimentale qui permet d'avoir deux voies de mesure bien corrélées, grâce notamment à l'introduction d'une troisième lame prismatique LP3 pour rétablir le même niveau de signal sur les deux voies sans utiliser de densités supplémentaires et pour que les dérives angulaires du faisceau provoquent la même dérive de signal sur les deux détecteurs. Ceci sera particulièrement important dans le cas du laser fortement multimode qui a tendance à beaucoup se dépointer. Si les deux voies ne subissent pas le même nombre de réflexions, le dépointé angulaire du faisceau n'aura pas le même effet sur les deux voies de mesure. Il faut également noter, que seule une telle configuration, composée de deux voies de mesure identiques, une avec, et l'autre sans échantillon permet de mesurer exactement la transmission normalisée telle qu'elle est définie et simulée. Cette configuration permet, en outre, de se débarrasser efficacement des fluctuations du faisceau. C'est une des raisons pour lesquelles notre montage permet une mesure aussi sensible de l'indice de réfraction non-linéaire. En outre, un grand soin a été apporté à égaliser les longueurs des deux voies de mesure et leur distance par rapport à la lame prismatique LP2.

Enfin, les éléments nécessaires à la caractérisation du faisceau (quatrième point) sont placés de telle sorte qu'ils permettent une mesure in-situ des paramètres spatio-temporels du faisceau. Les appareils de mesure utilisés seront présentés plus loin.

3.6.3 Signal à vide et corrélation des voies de mesure

Une étape importante et particulièrement délicate concerne le réglage de la corrélation entre les signaux fournis par les deux voies de mesure. Les fluctuations en énergie du faisceau sont une première source de fluctuation du signal mesuré par les photodiodes, mais ce n'est pas la seule puisqu'une infime partie du faisceau est prélevée par les diaphragmes des deux voies. Les sources de fluctuation du signal mesuré peuvent donc être multiples. En particulier, expérimentalement, il a été remarqué que le dépointé angulaire du faisceau est un des effets les plus importants sur la fluctuation de l'énergie transmise par les diaphragmes. Par ailleurs, ce dépointé est à l'origine de fluctuations encore plus importantes si le faisceau possède des variations spatiales hautes fréquences. C'est le cas ici, le mouvement de poussières dans le faisceau ou sur les éléments du montage engendre quelques figures de diffraction et un peu de speckle. Dans ces conditions, si le diaphragme ou la taille des détecteurs est de l'ordre de grandeur de ces fluctuations hautes fréquences, les fluctuations de l'énergie transmise par le diaphragme peuvent devenir très importantes. Des fluctuations très peu corrélées de l'ordre de $\pm 10\%$ ont été constatées dans ces conditions sur les deux voies, rendant l'utilisation d'une voie de référence parfaitement inutile.

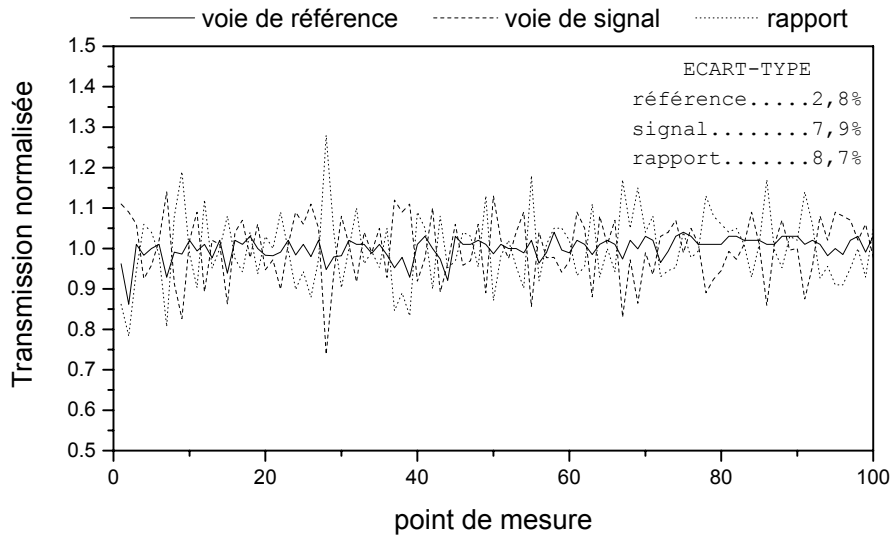


FIG. 3.19 – Niveaux de signal normalisé à vide, obtenus sur les voies signal et référence pour 100 impulsions consécutives (voie de référence bien alignée, voie de signal légèrement dérégulée)

Pour résoudre ce problème, des diaphragmes d'environ 3 mm de diamètre sont utilisés pour intégrer les fluctuations hautes fréquences du faisceau sur l'axe optique et un diffuseur est placé juste devant les détecteurs pour détruire la cohérence du faisceau et illuminer les photodiodes avec une répartition lumineuse uniforme, proportionnelle à l'énergie totale transmise par le diaphragme. Dans ces conditions, seul le dépointé continue à induire des fluctuations. Au mieux, lorsque les diaphragmes sont bien centrés par rapport au faisceau, des fluctuations d'environ ± 3 à 4% en écart-type sont observées sur les deux voies de mesure qui sont, par ailleurs bien corrélées. Lorsqu'un des deux diaphragme est un peu dérégulé, l'amplitude de ces fluctuations est accrue et la corrélation n'est plus suffisante, induisant même de plus fortes fluctuations sur le rapport (voir figure 3.19).

Pour obtenir une bonne corrélation, les deux voies sont réglées grossièrement de manière à centrer correctement le faisceau sur les diaphragmes. Le signal sur les deux voies est ensuite maximisé. Enfin, de fines retouches sont nécessaires tant que les voies ne sont pas parfaitement corrélées. Le signal à vide (sans échantillon) est alors mesuré. La figure 3.20 représente le signal à vide obtenu pour 300 impulsions consécutives. La fluctuation des deux signaux est d'environ $\pm 3\%$ autour de leur valeur moyenne, mais les deux voies semblent bien corrélées à première vue.

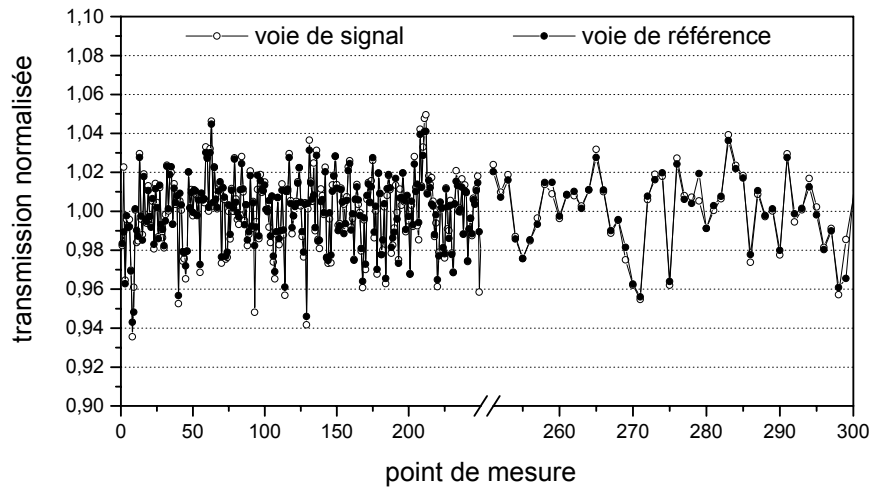


FIG. 3.20 – Niveaux de signal normalisé à vide, obtenus sur les voies signal et référence pour 300 impulsions consécutives

La dispersion de signal sur les deux voies de mesure et sur le rapport des deux signaux est représentée à la figure 3.21.

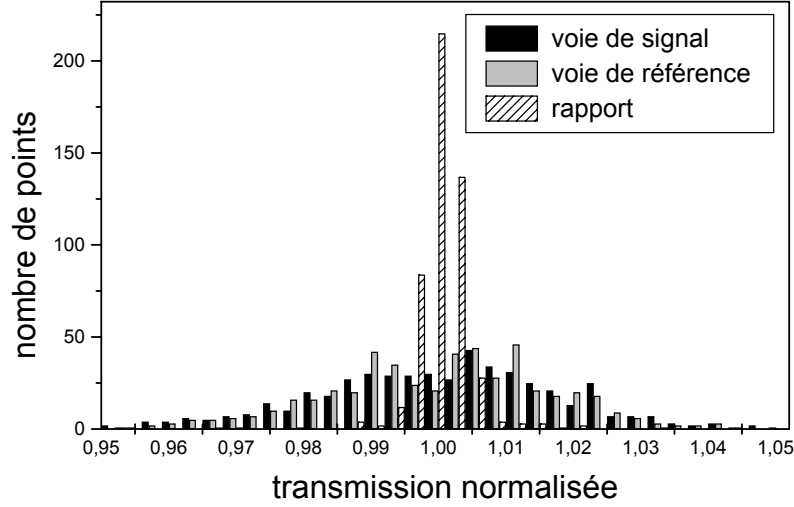


FIG. 3.21 – *Dispersion du signal des voies de mesure et du rapport autour de leur valeur moyenne*

La voie de référence permet donc de réduire considérablement le bruit multiplicatif inhérent à la méthode de Z-scan. Ceci a été possible en utilisant deux voies parfaitement identiques. Dans ces conditions, le rapport de signal entre les deux voies de mesure nous permet de réduire les fluctuations du signal à vide à $\pm 0,5\%$. Ainsi, en effectuant par ailleurs des moyennes sur 100 points pour chaque position longitudinale de l'échantillon, il est possible de réduire encore le bruit à une valeur de $\pm 0,05\%$. En pratique, nous serons même très souvent au dessous de cette valeur. Avec une variation de transmission normalisée de $\pm 1,5\%$, par exemple, une précision de l'ordre de 3% sur la détermination de ΔT peut être envisagée. Ceci correspond alors à une précision sur la variation de chemin optique dans l'échantillon de $\lambda/3000$, soit une amélioration de sensibilité d'un rapport 10 par rapport à l'étude de Sheik-Bahae.

Cette sensibilité particulièrement bonne a été rendue possible par la mise en place d'un montage particulièrement soigné, équipé de deux voies de mesure parfaitement corrélées et doté d'une mise en forme du faisceau incident particulièrement stable. Ce banc de mesure va donc nous permettre de mesurer des indices de réfraction aussi faibles que celui de la silice, soit l'un des plus faibles indices de réfraction non-linéaire.

3.6.4 Etude des caractéristiques temporelles du faisceau incident

Avec des largeurs d'impulsion de l'ordre de la dizaine de nanosecondes, il est encore possible d'utiliser des photodétecteurs suffisamment rapides, contrairement aux impulsions picosecondes et femtosecondes qui nécessitent une mesure de profil temporel par corrélation d'impulsions.

Dispositif de mesure

Une photodiode en *InGaAs* de $25\ \mu\text{m}$ de diamètre et de $25\ \text{GHz}$ de bande passante nous permet d'étudier le profil temporel des impulsions. Cette photodiode présente une réponse impulsionnelle de $17\ \text{ps}$ à mi-hauteur (voir figure 3.22). Un câblage approprié pour ce genre d'application haute-fréquence est utilisé et relié à un oscilloscope de $500\ \text{MHz}$ de bande passante.

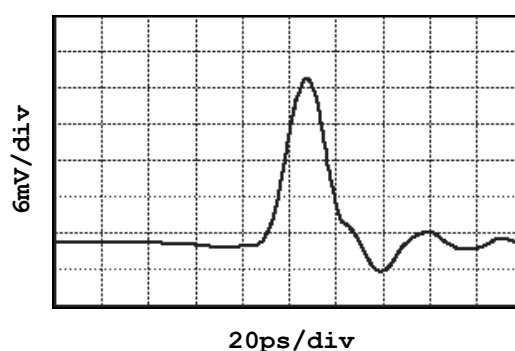


FIG. 3.22 – Réponse de la photodiode à une impulsion de $1\ \text{ps}$ à $532\ \text{nm}$

Source : <http://www.newfocus.com>

Dans ces conditions, le profil temporel des impulsions laser peut être contrôlé avec précision. Nous verrons plus tard quelle est l'information pertinente qu'il faut tirer de ces mesures de profil temporel dans le cas d'une étude de Z-scan.

Cas du laser faiblement monomode

Dans ces conditions, le profil temporel observé est représenté à la figure 3.23 pour deux impulsions consécutives, obtenues sur l'axe optique, après mise en forme spatiale du

faisceau.

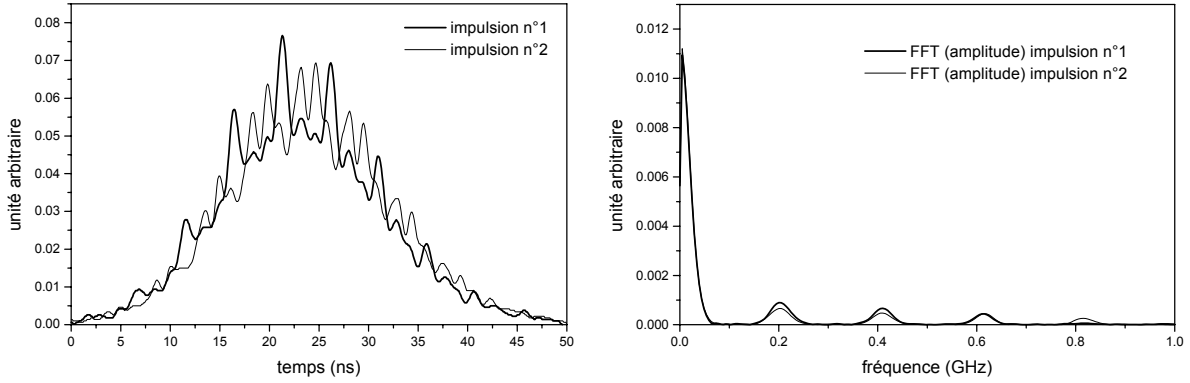


FIG. 3.23 – Exemples de profil temporel observés à 1ω (à gauche) et leur transformée de Fourier (à droite)

Le profil perturbé des impulsions provient d'interférences entre les différents modes longitudinaux de la cavité laser. L'observation dans l'espace de Fourier permet de voir les différents modes longitudinaux de la cavité sont distants fréquentiellement de $0,2\text{ GHz}$, ce qui correspond à une longueur de cavité de 75 cm .

L'oscilloscope limite, par sa bande passante de 500 MHz la résolution de notre système d'acquisition. Il permet cependant théoriquement de résoudre correctement les oscillations entre deux modes longitudinaux, distants de 200 MHz , voire les oscillations provoquées par les interférences avec le mode suivant. Nous tenterons, dans le chapitre dédié à l'exploitation des mesures, d'estimer l'erreur provoquée par cette coupure.

Cas du laser fortement multimode

De la même façon, l'allure des impulsions a été mesurée et représentée pour deux impulsions différentes dans le cas du laser fortement multimode (figure 3.24). La durée des impulsions du laser fortement multimode est donc bien plus étroite que pour le laser faiblement multimode. Ceci nous permettra d'atteindre des puissances plus élevées et nous laissera un peu plus de latitude pour effectuer des études de Z-scan dans des conditions différentes.

Comme nous l'avons déjà évoqué précédemment, un changement sur les conditions de pompage du milieu amplificateur peut avoir des effets sur les comportements des impul-

sions du laser et particulièrement sur leur durée. Ceci a pu être vérifié expérimentalement en observant l'allure des impulsions pour une puissance de pompage égale à la moitié de la puissance maximum. La figure 3.25 illustre ce phénomène. Les deux impulsions présentées ont une aire identique. Pour la même énergie, il est clair que la puissance maximale ne sera pas la même.

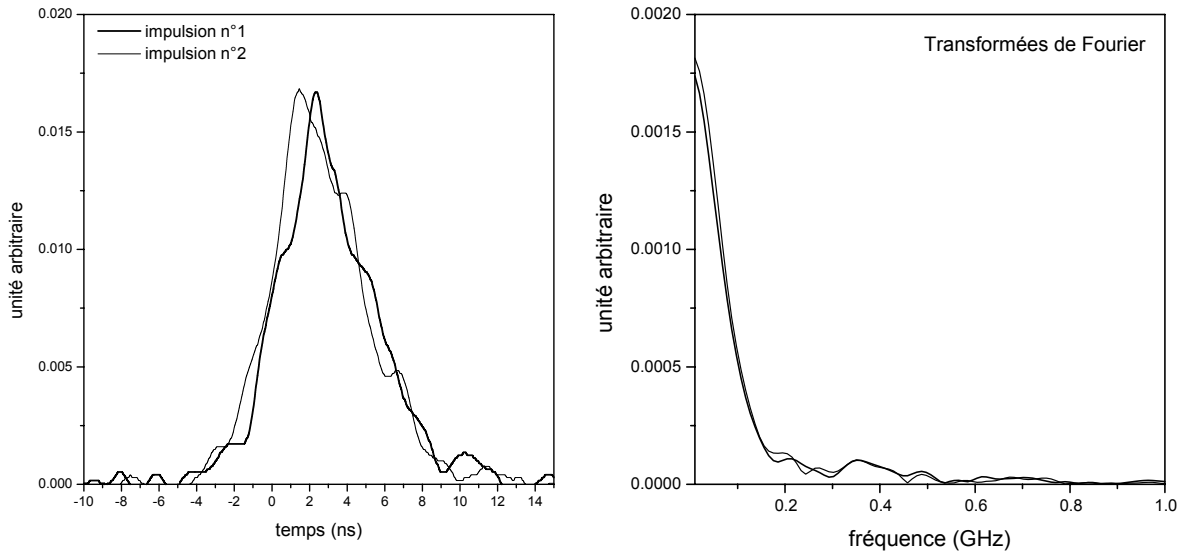


FIG. 3.24 – Exemples de profil temporel observés à 1ω (à gauche) et leur transformée de Fourier (à droite)

Par ailleurs, l'allure des impulsions à mi-puissance montre clairement qu'il y a des interférences entre un ou plusieurs modes longitudinaux. L'observation dans l'espace de Fourier permet de voir que les différents modes longitudinaux de la cavité sont distants ici de $0,35\text{ GHz}$, ce qui correspond à une longueur de cavité de 43 cm . Le laser fortement multimode est en effet doté d'une cavité plus courte.

Dans le cas de ce laser, les impulsions ont une durée plus faible et les modes longitudinaux sont plus éloignés fréquentiellement, ce qui provoque des interférences oscillant plus rapidement. Le problème de la bande passante de l'oscilloscope risque ici réellement de mal résoudre les oscillations dues aux interférences. Toutefois, les oscillations observées sur le profil obtenu à mi-puissance permettent de constater que la résolution n'est pas si mauvaise et que l'on est très certainement en présence de battements entre deux modes longitudinaux principalement.

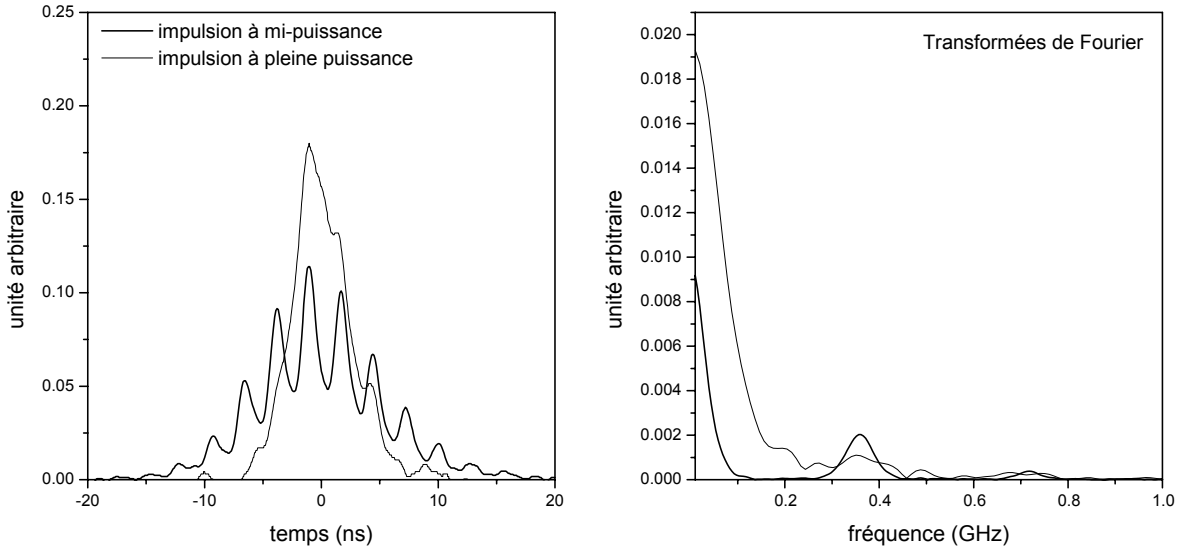


FIG. 3.25 – Profil temporel observés à 1ω (à gauche) avec le laser à pleine puissance et à mi-puissance et leur transformée de Fourier (à droite)

3.7 Conclusion

A partir de l'équation de Boling, Glass et Owyong, permettant d'évaluer l'indice non-linéaire de verres optiques, et à travers deux exemples d'études systématiques récentes, nous avons vu que les verres optiques ont un indice de réfraction non-linéaire situé entre 1 et $40 \times 10^{-20} m^2/W$ en régime femtoseconde. Pour des matériaux amorphes particuliers, comme des verres sulfures, la valeur de l'indice peut même atteindre $10^{-16} m^2/W$, c'est à dire l'ordre de grandeur de l'indice de réfraction non-linéaire des semiconducteurs, par exemple. Ces derniers matériaux ont donc des propriétés non-linéaires particulièrement importantes qui peuvent trouver de nombreuses applications comme la limitation ou la commutation optique. Dans le contexte de l'étude de l'endommagement laser et des effets de l'autofocalisation dans ce processus, notre intérêt porte plutôt sur les verres comme la silice et, plus généralement les silicates qui possèdent un indice de réfraction non-linéaire de l'ordre de $10^{-20} m^2/W$. Avec un tel indice de réfraction non-linéaire et en régime nanoseconde, nous avons vu que la configuration de Z-scan qu'il est alors nécessaire d'adopter ne permet pas de conserver l'approximation d'échantillon fin. Le régime nanoseconde nous impose, en outre, une limitation de taille : celle de l'endommagement du matériau. Nous avons donc dû trouver un compromis permettant de conserver un niveau de signal élevé,

mais sans endommager le matériau, et en conservant une énergie faible nous permettant de rester loin de la puissance critique du matériau. Nous devons alors travailler avec un faisceau suffisamment focalisé, sur un diamètre d'une vingtaine de microns. Ainsi, nous travaillerons dans le régime d'intensité et de fluence désiré, et loin de la puissance critique. Dans ces conditions, la variation de transmission normalisée sera d'environ 1% et il faudra mettre en place un montage particulièrement stable et sensible.

Les deux lasers utilisés ont été caractérisés avec précision, afin de déterminer une mise en forme adaptée qui permet d'obtenir un faisceau doté d'une bonne symétrie cylindrique, d'une grande stabilité et qui soit aisément modélisable. Une mise en forme de type "tâche d'Airy tronquée" a été choisie car elle répond à tous ces critères. Elle est, en outre, la méthode la plus simple de mise en forme pour un faisceau de forte fluence et permet un passage au second harmonique simple. Enfin, ce type de faisceau est censé améliorer la sensibilité de la méthode. Toutefois, aucun modèle analytique ne permet de quantifier l'effet d'une telle mise en forme sur le comportement des courbes de transmission normalisée. L'objet du chapitre suivant concerne la mise en place d'une modélisation adaptée à cette mise en forme.

Dans ces conditions, la mise en place du montage expérimental a été décrite en détails. Malgré le gain de sensibilité apporté par l'utilisation d'échantillon épais et d'un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée", les variations de transmission normalisée ne dépasseront pas quelques pourcents. Ainsi, un soin tout particulier a été apporté à la mise en place expérimentale pour améliorer le rapport signal sur bruit de la méthode. En installant une voie de référence parfaitement corrélée à la voie principale, les fluctuations de la transmission normalisée ont pu être divisées par 6. Ainsi, en moyennant la transmission normalisée sur des échantillons de 100 impulsions consécutives, notre configuration expérimentale permet de détecter des variations de transmission normalisée de 0,05%, ce qui correspond à des variations de chemin optique de $\lambda/3000$.

Enfin, les moyens de caractérisation du faisceau ont été présentés. Ceux-ci nous permettent de déterminer les paramètres spatio-temporels réels du faisceau incident avec une grande précision, ce qui permettra de tenir compte des caractéristiques réelles du faisceau lors des simulations numériques, de l'interprétation des mesures et de l'estimation des erreurs commises sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire.

Chapitre 4

Simulations numériques adaptées à une configuration de Z-scan quelconque

Toujours dans l'optique d'une mesure précise et parfaitement maîtrisée de l'indice de réfraction non-linéaire par la méthode de Z-scan, il est nécessaire, d'une manière générale, de mieux connaître l'influence du profil spatial du faisceau sur le comportement des courbes de transmission normalisée. En effet, tous les modèles analytiques disponibles font l'approximation d'un faisceau gaussien, qui est souvent peu réaliste en pratique. Dans notre cas, nous avons choisi d'utiliser par ailleurs une mise en forme particulière, de type "tâche d'Airy tronquée". Nous avons donc développé une modélisation adaptée à la propagation d'un tel faisceau dans le vide, et d'autre part, dans un matériau non-linéaire, d'épaisseur quelconque, possédant des non-linéarités menant à une variation photo-induite de l'indice de réfraction, sans restriction sur son amplitude, son comportement vis à vis de l'intensité ou encore la présence ou non d'absorption non-linéaire. Une étude numérique est donc proposée, basée d'une part sur une méthode de propagation utilisant le principe de Huygens-Fresnel, et d'autre part, sur une méthode de propagation pas-à-pas dans l'échantillon non-linéaire. L'utilisation d'une telle méthode numérique est très intéressante pour sa grande versatilité. Elle permet, en effet, de simuler les courbes de transmission normalisée dans le cas d'un faisceau quelconque à symétrie circulaire, d'un échantillon d'épaisseur quelconque et même dans le cas de déphasages non-linéaires importants. Cette méthode va nous permettre de mieux connaître les limites de validité des différents modèles analytiques, et ainsi permettre une mesure absolue précise de l'indice de réfraction non-linéaire.

4.1 Introduction

La configuration expérimentale adoptée et plus particulièrement la méthode de filtrage spatial choisie nous contraint à étudier l'expérience de Z-scan avec un faisceau non gaussien. En effet, pour éliminer une grande partie des fréquences spatiales élevées du faisceau issu de notre laser et travailler avec un faisceau à symétrie circulaire, nous avons choisi d'utiliser une association de deux diaphragmes pour mettre en forme un faisceau à symétrie circulaire de type fonction d'Airy tronquée. D'après Rhee [63], ce type de faisceau permet d'améliorer la sensibilité de la méthode de Z-scan. Dans notre cas, ceci est particulièrement intéressant puisque le déphasage non-linéaire mesuré est très faible.

Dans le cas d'un faisceau gaussien, la répartition d'intensité radiale et longitudinale du faisceau est entièrement connue avec la seule mesure du rayon au point de focalisation. Dans notre cas particulier, il n'existe pas de description aussi simple de la propagation d'un tel faisceau. Dans ce chapitre, nous nous proposons d'utiliser le formalisme scalaire de la diffraction de Fresnel pour décrire la propagation du faisceau incident et la comparer à notre caractérisation expérimentale.

Par ailleurs, plus aucun modèle analytique n'est alors disponible pour modéliser la propagation d'un tel faisceau dans un matériau d'épaisseur supérieure à la profondeur de champ du faisceau et possédant des non-linéarités cubiques. Nous proposons de simuler numériquement la propagation d'un faisceau quelconque de symétrie circulaire dans un matériau d'indice de réfraction non-linéaire faible. Le type de simulation numérique adopté repose sur la méthode de propagation pas-à-pas de Feit et Fleck [107]. Nous discuterons des limites de validité de ce modèle et vérifierons qu'il converge bien vers les différents modèles analytiques développés dans des cas particuliers. Nous étudierons ensuite, non seulement l'influence du faisceau choisi sur la sensibilité de la méthode de Z-scan, mais aussi les effets de l'absorption linéaire, de l'absorption non-linéaire et la linéarité de la méthode en fonction de la variation d'indice de réfraction.

4.2 Simulation numérique du faisceau incident

4.2.1 Description du problème

Dans notre montage expérimental (voir figure 4.1), le faisceau incident issu du laser est tronqué par un diaphragme $D1$ de rayon a_1 et diffracte sur une distance d_1 . Le centre de la tâche d'Airy est prélevé à l'aide d'un diaphragme $D2$ de rayon a_2 correspondant à la première annulation de la tâche d'Airy, c'est à dire : $a_2 = 1,22 \times \lambda d_1 / a_1$. Le faisceau de type "Airy tronqué" ainsi formé diffracte sur une distance d_2 avant de traverser une lentille. Cette lentille sera considéré comme une lentille mince, c'est à dire, notamment, que nous négligerons la distance entre son plan principal objet et son plan principal image.

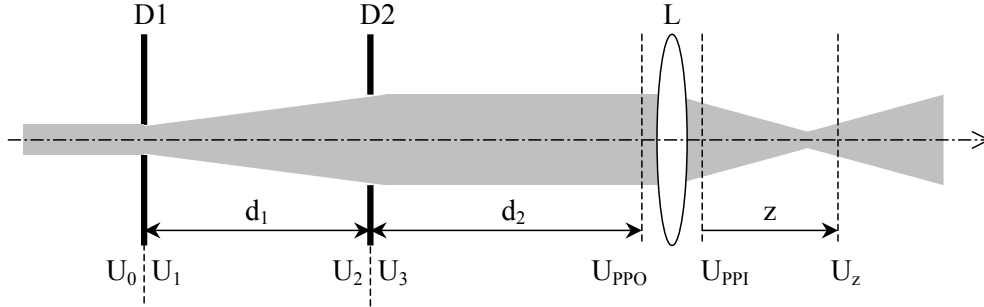


FIG. 4.1 – *Configuration expérimentale*

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe sur la mise en forme du faisceau incident, la répartition d'amplitude complexe sur le premier diaphragme peut être assimilée à une gaussienne de phase quasi uniforme illuminant une ouverture circulaire de diamètre bien inférieur au diamètre du faisceau. Ainsi, nous considérerons dans notre modèle de propagation le cas d'une onde plane en incidence normale sur le premier diaphragme. Le problème est également considéré à symétrie circulaire. L'amplitude $U_0(r)$ avant le premier diaphragme est supposée constante. L'amplitude après le diaphragme est par conséquent une fonction du type :

$$U_1(r) = \begin{cases} 1 & \text{si } r \leq a_1 \\ 0 & \text{si } r > a_1 \end{cases} \quad (4.1)$$

4.2.2 Rappels sur la théorie scalaire de la diffraction et approximation de Fresnel

Théorie scalaire de la diffraction

La théorie scalaire de la diffraction (voir l'ouvrage de Goodman [108]) est basée sur le principe de Huygens-Fresnel qui suppose que pour décrire la propagation de la lumière, il suffit de connaître son front d'onde à un instant et considérer que chaque point du front d'onde peut être assimilé à une source ponctuelle secondaire rayonnant une onde sphérique. Le nouveau front d'onde un instant plus tard peut être obtenu comme l'enveloppe des petites ondes sphériques s'étant propagées en espace libre pendant cet instant. La traduction rigoureuse de ce principe intuitif a été faite par Sommerfeld, donnant naissance à la célèbre intégrale de Rayleigh-Sommerfeld, qui permet de décrire avec une grande précision la plupart des problèmes de diffraction par des écrans plans de transmission complexe (amplitude et phase) et de propagation de faisceau en espace libre, pourvu que les dimensions des objets diffractants soient grandes devant la longueur d'onde et que l'on n'observe pas le champ trop près de ces mêmes objets.

Configuration et approximation de Fresnel

L'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld n'est pas très simple à manipuler directement et, dès que les conditions le permettent, l'approximation de Fresnel est faite. Considérons la configuration suivante : à partir de la répartition d'amplitude $U_1(x_1, y_1)$ dans un plan (x_1, O_1, y_1) , on désire connaître la répartition d'amplitude $U_2(x_2, y_2)$ dans un plan (x_2, O_2, y_2) situé à une distance d . Ces deux plans sont perpendiculaires à un axe z , orienté dans le sens de la propagation de la lumière.

Si la dimension transversale du faisceau au cours de sa propagation reste faible devant la distance d (approximation paraxiale), l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld peut être approximée par :

$$U_2(x_2, y_2) = -\frac{i}{\lambda d} e^{ikd} \iint U_1(x_1, y_1) e^{\frac{ik}{2d} [(x_1-x_2)^2 + (y_1-y_2)^2]} dx_1 dy_1 \quad (4.2)$$

où $k = 2\pi/\lambda$ est le vecteur d'onde dans le milieu considéré (ici d'indice égal à 1).

On remarque au passage que notre système est un filtre linéaire puisque l'amplitude dans le second plan se calcule comme le produit de convolution de l'amplitude dans le

premier plan avec une réponse impulsionnelle $h(x_2, y_2)$, où :

$$h(x_2, y_2) = -\frac{i}{\lambda d} e^{ikd} e^{\frac{ik}{2d}(x_2^2 + y_2^2)} \quad (4.3)$$

Dans le cas d'une symétrie circulaire, l'amplitude U_1 ne dépend plus que de la coordonnée radiale r_1 . En introduisant le système de coordonnées cylindriques et en intégrant sur θ_1 (ce qui introduit une fonction de Bessel), l'intégrale 4.2 devient :

$$U_2(r_2) = -\frac{ik}{d} e^{ikd} e^{\frac{ik}{2d}r_2^2} \int r_1 U_1(r_1) e^{\frac{ik}{2d}r_1^2} J_0\left(\frac{kr_1 r_2}{d}\right) dr_1 \quad (4.4)$$

Validité de l'approximation de Fresnel

Tout d'abord, il ne faut pas perdre de vue que l'intégrale de Rayleigh-Sommerfeld n'est valide que pour des dimensions de faisceau grandes devant la longueur d'onde, ce qui est le cas dans notre configuration expérimentale, dans laquelle le diamètre du faisceau sera toujours supérieur à plusieurs dizaines de fois la longueur d'onde. Par ailleurs, pour écrire l'intégrale 4.2, il faut que, dans les plans $(x_1 O_1 y_1)$ et $(x_2 O_2 y_2)$, le faisceau garde des dimensions transversales faibles devant la distance de propagation d . Si le faisceau reste confiné à un diamètre typique de $2a$, il faut donc que : $d \gg 2a$.

En pratique, cette condition est encore moins contraignante [59, 109] et l'intégrale de Fresnel reste parfaitement valide pour de faibles valeurs de d , à la condition, toutefois, que le faisceau diverge peu, c'est à dire qu'il ait lui-même un comportement paraxial. Southwell [109] a montré que l'approximation de Fresnel est encore valide sans erreur de phase significative pour des faisceaux de divergence inférieure à environ $\pi/75$ pour un nombre de Fresnel $N \approx 450$ ¹. En revanche, l'approximation de Fresnel n'est plus valable au voisinage immédiat d'objets diffractants à bord nets. Dans ce cas, l'approximation de paraxialité n'est plus valide.

Dans notre montage, les dimensions du faisceau ne dépassent pas quelques millimètres, tandis que les calculs de propagation d'un élément à l'autre se feront sur des distances de plusieurs dizaines de centimètres. La zone la plus critique se situe au niveau où le faisceau diverge le plus, c'est à dire après la lentille. La figure 4.2 représente une simulation de l'amplitude complexe du champ dans le plan principal image de cette lentille.

¹Le nombre de Fresnel est défini comme suit : $N = a^2/(\lambda d)$

La lentille possède une focale de 100 mm . D'après la figure 4.2, le faisceau possède un diamètre effectif d'environ 8 mm . Dans le pire des cas, nos simulations numériques seront faites avec une divergence d'environ $\pi/80$ et un nombre de Fresnel d'environ 150. L'approximation de Fresnel est alors parfaitement justifiée dans ce cas.

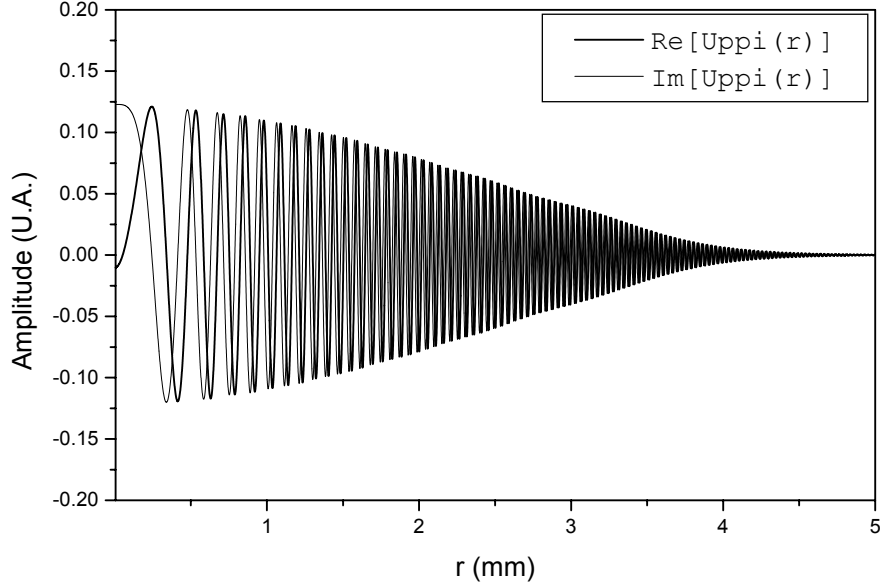


FIG. 4.2 – Simulation numérique de l'amplitude complexe dans le plan principal image de la lentille à l'aide de l'approximation de Fresnel

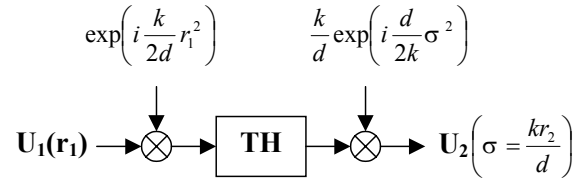
4.2.3 Schéma de propagation d'un plan à un autre

Reprenant l'intégrale de Fresnel en symétrie cylindrique 4.4, on constate que le terme intégral n'est autre que la transformée de Hankel d'ordre 0 du terme :

$$U_1(r_1) e^{\frac{ik}{2d}r_1^2} \quad (4.5)$$

avec comme fréquence spatiale associée : $\sigma = \frac{kr_2}{d}$

En oubliant les termes de déphasage constant, on peut écrire le schéma de propagation suivant :



où **TH** désigne la transformation de Hankel d'ordre 0 définie comme suit :

$$TH\{f(r)\} = \hat{f}(\sigma) = \int_0^\infty r f(r) J_0(\sigma r) dr \quad (4.6)$$

Ce schéma de propagation peut être utilisé pour calculer l'amplitude complexe du champ sur le deuxième diaphragme, puis, après troncature à $a_2 = 1,22 \times \lambda d_1/a_1$, l'amplitude dans le plan principal objet de la lentille. L'amplitude dans le plan principal image de la lentille est ensuite calculée en faisant une approximation de lentille mince convergente de focale f , c'est à dire en multipliant l'amplitude dans le plan principal objet par un terme de phase du type :

$$\exp\left(-i\frac{k r^2}{2f}\right)$$

Enfin, une fois l'amplitude dans le plan principal image déterminée, une nouvelle étape de propagation sur une distance z sera effectuée pour autant de valeurs z que nécessaire pour décrire correctement le faisceau incident autour du point de focalisation.

4.2.4 Transformation de Hankel numérique

D'un point de vue numérique, le calcul direct de l'intégrale 4.6 nécessite un algorithme de complexité $N \times N$. En coordonnées cartésiennes, la transformation de Fourier peut être estimée numériquement par des algorithmes du type FFT (Fast Fourier Transform) permettant de réduire la complexité à $N \times \log N$ [110].

Dans le cas de la transformation de Hankel, le problème est un peu plus délicat. Il n'existe pas de méthodes numériques qui puissent calculer directement la transformation de Hankel avec le même gain de temps de calcul que celui offert par la FFT. En revanche, il est possible, grâce à un échantillonnage logarithmique, d'exprimer la transformation de Hankel sous la forme d'un produit de convolution [111]. Ce produit de convolution peut ensuite être calculé à l'aide d'une FFT, une multiplication par une certaine fonction analytique, puis une FFT inverse. Cette idée a donné lieu à plusieurs méthodes numériques de

calcul rapide de transformation de Hankel. Parmi celles-ci, nous utiliserons l'algorithme de FFTLog originalement décrit par Talman [112] et adapté et programmé par Hamilton [113].

Pour utiliser cet algorithme, il faut choisir un échantillonnage logarithmique en r et en σ . A partir du premier terme r_0 et du dernier terme r_N de la suite r_i (avec $i \in \{0, N\}$), l'échantillonnage logarithmique suivant est défini :

$$r_i = r_c \times a^{\frac{i}{N} - \frac{1}{2}} \quad \text{avec} \quad r_c = \sqrt{r_0 r_N} \quad \text{et} \quad a = \frac{r_N}{r_0} \quad (4.7)$$

Ceci permet d'obtenir un échantillonnage logarithmique de $N + 1$ points variant de r_0 à r_N dans lequel le point central à $N/2$ vaut r_c . Pour l'échantillonnage de σ dans l'espace réciproque, une expression analogue est introduite :

$$\sigma_i = \sigma_c \times a^{\frac{i}{N} - \frac{1}{2}}$$

Dans ce cas, il faut également imposer la valeur du produit $r_c \sigma_c$ qui permet d'ajuster le centrage de l'échantillonnage en σ par rapport à celui en r .

Il est nécessaire d'utiliser un grand nombre de points pour échantillonner correctement les oscillations rapides du champ pour les grandes valeurs de r . L'échantillonnage logarithmique impose alors un sur-échantillonnage pour les faibles valeurs de r . Enfin, comme tout algorithme de transformation de Fourier, il est nécessaire que la fonction à laquelle la FFT est appliquée ne possède pas de coupure brutale qui engendrerait de fortes oscillations de Gibbs [110].

Dans notre configuration, le faisceau sera le plus large et possédera le rayon de courbure le plus prononcé dans le plan principal image de la lentille. Pour déterminer rapidement l'échantillonnage adapté, l'amplitude dans le plan principal image est assimilée à l'amplitude à $z = -f' = -100 \text{ mm}$ d'un faisceau gaussien de rayon $15 \mu\text{m}$ à $z = 0$. Dans ces conditions, le faisceau possède un rayon à $1/e^2$ en intensité égal à $w = 2,3 \text{ mm}$ dans le plan principal image. Par ailleurs, le terme de phase le plus significatif à cette position est celui introduit par la lentille, à savoir :

$$\phi(r) = \frac{\pi}{\lambda f} r^2 \quad (4.8)$$

Pour échantillonner correctement l'amplitude complexe, le critère que l'on s'impose est d'avoir au moins 2 points par période (soit $\phi(r_{i+1}) - \phi(r_i) < \pi$) pour $r = 2w \approx$

5 mm. Utilisant les expressions 4.7 et 4.8 de l'échantillonnage et de la phase, notre critère équivaut à la condition :

$$N > \frac{\ln a}{\ln \left(1 + \frac{\lambda f}{r^2}\right)} \quad (4.9)$$

Si r reste inférieur au centimètre, un développement limité du logarithme nous donne :

$$N > \frac{r^2 \ln a}{\lambda f} \quad (4.10)$$

Nous voyons donc que le nombre de points nécessaires ne dépend que faiblement de a . Pour éviter toute erreur due à une coupure brutale, il est donc possible, sans trop augmenter le temps de calcul, de choisir un échantillonnage sur un grand nombre de décades. Avec 14 décades ($a = 10^{14}$), et pour une longueur d'onde de $1,064 \mu\text{m}$, la condition précédente équivaut à $N > 7600$. Nous choisirons par la suite de travailler avec 10000 points. Dans le cas d'un faisceau gaussien, la figure 4.3 représente le module de la fonction à laquelle sera appliquée la première FFT nécessaire au calcul de la transformation de Hankel numérique. Le phénomène d'oscillation de Gibbs sera très faible car pour un si grand nombre de décades, il n'y a pas de coupure brutale quand $r \rightarrow 0$.

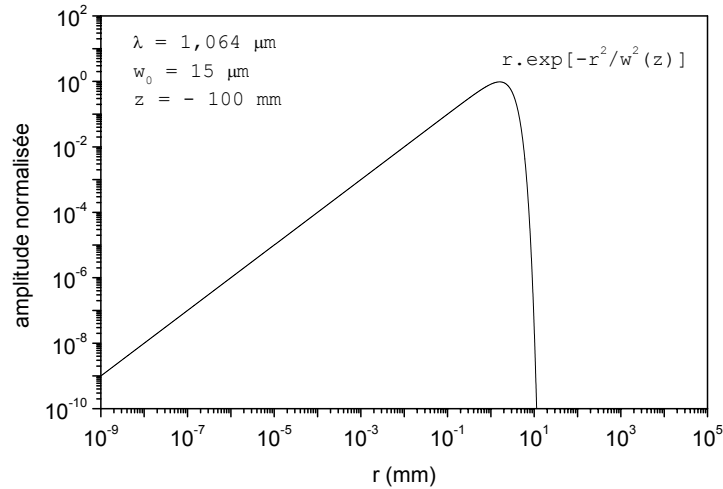


FIG. 4.3 – Module de l'amplitude dans le plan principal image de la lentille (cas gaussien, échelle LOG-LOG)

Même s'il nécessite un grand nombre de points, il faut donc noter que l'échantillonnage logarithmique permet de résoudre avec une très grande précision la répartition spatiale du faisceau autour de l'axe optique, et donc, dans la zone où le phénomène d'autofocalisation est significatif et où il engendrera une réduction de la taille du faisceau. Par ailleurs, ce type d'échantillonnage permet de travailler sur une très large plage, réduisant ainsi fortement le problème d'oscillations de Gibbs. Enfin, il est important de rappeler que l'utilisation de la symétrie cylindrique est parfaitement adaptée dans le cas de notre faisceau. L'algorithme de FFTLog sera également utilisé dans les mêmes conditions pour la propagation en milieu non-linéaire qui sera abordé dans la partie suivante.

4.2.5 Remarques sur la mise en forme du faisceau

La méthode de mise en forme du faisceau adoptée a, quelques fois, été qualifiée de "filtrage spatial". En toute rigueur, on parle de filtrage spatial d'un faisceau lorsque celui-ci est quasi-monomode transverse et que l'on le débarrasse de quelques perturbations de fréquences élevées, introduites principalement par de la diffusion et par le phénomène de speckle. Ce filtrage s'effectue alors assez facilement avec un montage de filtrage spatial classique, constitué de deux lentilles en montage afocal et d'un trou de filtrage. Lorsque le faisceau est très fortement multimode transverse, la notion de filtrage spatial perd un peu de son sens. Il n'est pas simple de se débarrasser des modes transverses indésirables autrement qu'en favorisant le mode TEM_{00} à l'intérieur même de la cavité [59, 114]. Dans le cas particulier d'un faisceau de profil radial rectangulaire, il est pratiquement impossible d'éliminer tous les modes d'ordre élevé pour obtenir un faisceau purement monomode transverse. En revanche, il est possible d'utiliser une mise en forme de type "tâche d'Airy tronquée" permettant d'obtenir aisément un faisceau, certes non-gaussien, mais contenant très peu de modes d'ordre élevé.

Par ailleurs, la diffraction du faisceau sur la distance séparant les deux diaphragmes repousse loin de l'axe optique les fréquences élevées contenues dans le profil initial du faisceau. Ainsi, les perturbations du faisceau au niveau du premier diaphragme peuvent être éliminées par le second diaphragme. La qualité du faisceau au niveau du premier diaphragme a donc peu d'importance lors d'une mise en forme de type "tâche d'Airy tronquée". En ce sens, on peut dire qu'un filtrage spatial a été effectué implicitement lors de la mise en forme du faisceau. La figure 4.4 représente la répartition d'intensité sur le second diaphragme dans le cas d'un profil radial rectangulaire après le premier

diaphragme et dans le cas d'un profil radial modulé par une perturbation sinusoïdale. Cette perturbation ne change quasiment pas le pic central de la tâche d'Airy obtenue sur le diaphragme D2. La perturbation au niveau du diaphragme D2 se traduit par l'apparition d'un léger sursaut d'intensité un peu plus loin de l'axe optique comme on pouvait s'y attendre.

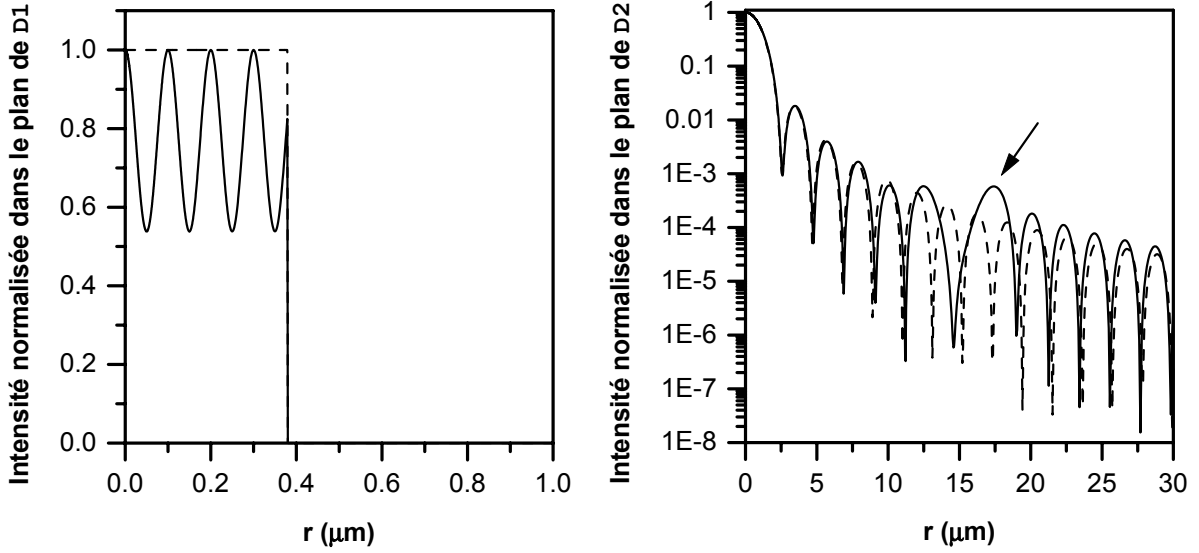


FIG. 4.4 – Répartition d'intensité dans les plans des diaphragmes D1 et D2 dans le cas d'un profil radial rectangulaire et d'un profil radial rectangulaire possédant une forte perturbation sinusoïdale. Sur la figure de droite, l'échelle est logarithmique en ordonnées

Une autre remarque mérite d'être faite concernant non plus une perturbation d'amplitude mais une perturbation de phase au niveau du premier diaphragme. Pour pouvoir correctement couper le faisceau au niveau du premier diaphragme, il peut s'avérer nécessaire d'élargir le faisceau au préalable. Dans ce cas, il est indispensable que celui-ci conserve une phase uniforme au niveau du premier diaphragme, ce qui nécessite de mettre en place un montage afocal. En effet, si le faisceau possède une surface d'onde sphérique divergente avant le premier diaphragme, une dégradation de la tâche d'Airy est observée, pouvant aller jusqu'à la disparition des premières annulations et rendant incertaine la mise en forme envisagée (figure 4.5).

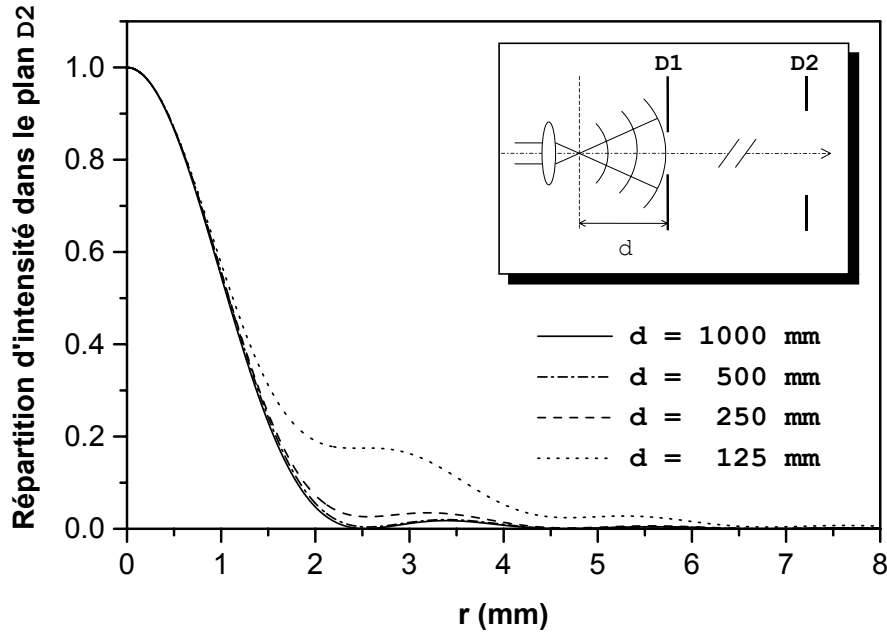


FIG. 4.5 – *Effet d'une surface d'onde sphérique divergente sur le plan du premier diaphragme (longueur d'onde : 532 nm, rayon du premier diaphragme : 0,38 mm, distance $D1 \rightarrow D2$: 1,5 m)*

Cet exemple fournit, certes, des informations intéressantes pour qui veut mettre en forme un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée", mais il montre aussi la versatilité de ce type d'algorithme : plusieurs types de mise en forme peuvent être envisagés.

4.2.6 Simulation numérique du faisceau incident

Dans ces conditions, l'amplitude complexe du faisceau incident a été calculée de part et d'autre du point de focalisation du faisceau. La figure 4.6 représente l'évolution du profil spatial en intensité le long de l'axe optique. Cette figure permet de constater un très bon accord entre simulation et expérience.

Par ailleurs, l'évolution de l'intensité sur l'axe optique est représentée sur les figures 4.7 et 4.8 pour 1ω et 2ω . Le cas d'un faisceau gaussien de même rayon à $1/e^2$ a été également représenté pour comparaison. Ces courbes permettent de constater également un bon accord entre les mesures et la simulation.

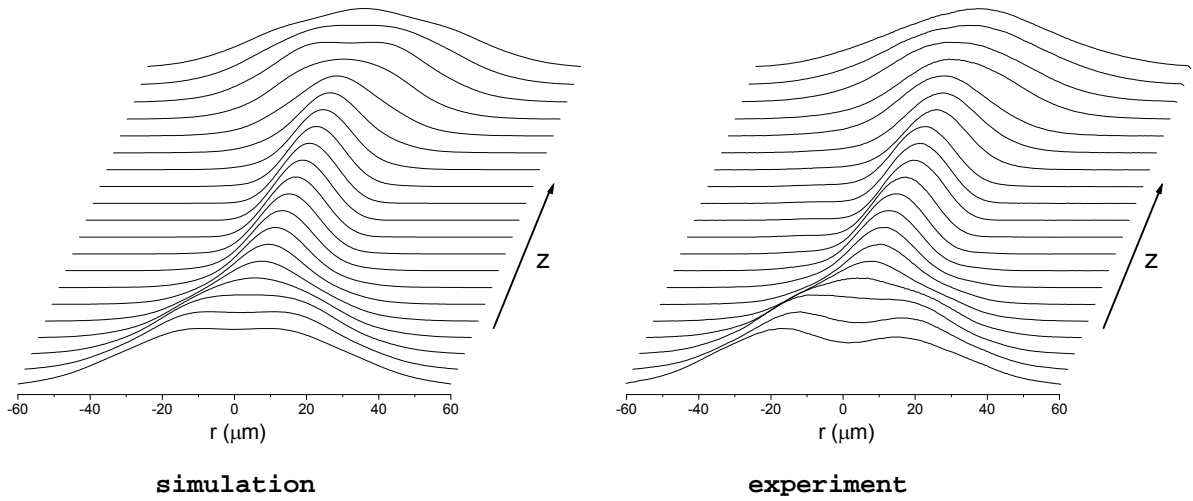


FIG. 4.6 – Evolution du profil spatial du faisceau incident le long de l'axe optique à 1ω (profils recalés à 1 en $r = 0$)

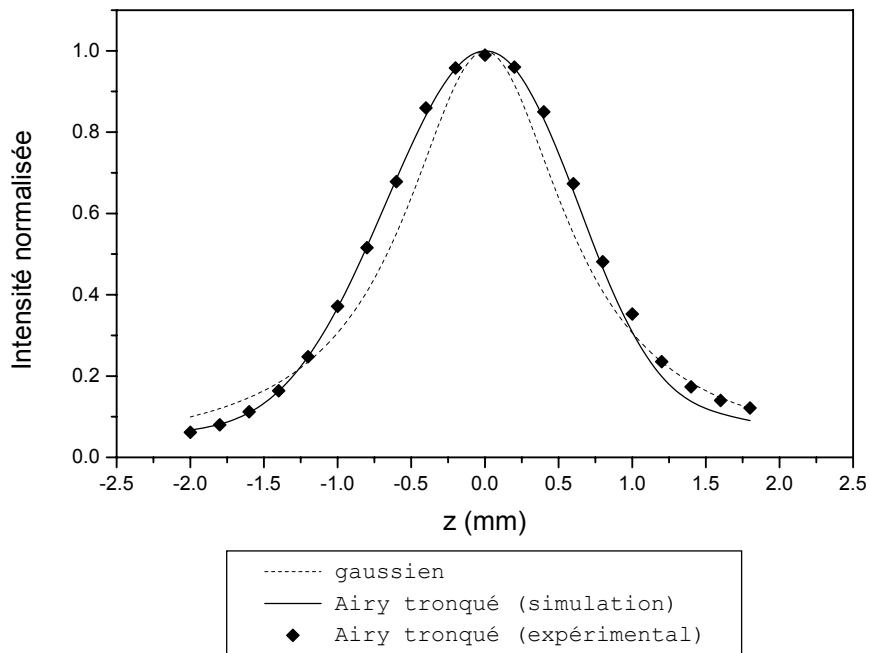


FIG. 4.7 – Intensité sur l'axe optique à 1ω

Notons que les paramètres utilisés pour réaliser ces simulations (a_1 , d_1 , d_2 et f) n'ont pas été retouchés pour trouver un bon accord avec les courbes expérimentales. Les paramètres utilisés proviennent simplement de la mesure précise des rayons des diaphragmes,

des distances entre les différents éléments du montage et de la focale de l'objectif. Le fait de retrouver quantitativement le même profil de faisceau et la même évolution le long de l'axe optique sans aucune retouche des paramètres de simulation démontre la précision de notre mise en forme et valide notre étalonnage de la caméra CCD. Cette manière de procéder fonctionne très bien dans le cas de la mise en forme du laser faiblement multimode et chaque caractérisation du faisceau est en parfait accord avec les précédentes : les caractéristiques spatiales du faisceau ne dérivent pas. Ce type de mise en forme est donc particulièrement stable et répétable.

En revanche, dans le cas du laser fortement multimode, la mise en forme est un peu plus délicate et il n'est pas simple d'avoir accès directement aux paramètres de mise en forme du faisceau. On procède alors par retouches des paramètres pour faire coïncider la simulation et les résultats expérimentaux. La métrologie du profil spatial ayant été validée par les mesures avec le premier laser, ce n'est pas gênant de procéder ainsi avec le deuxième laser.

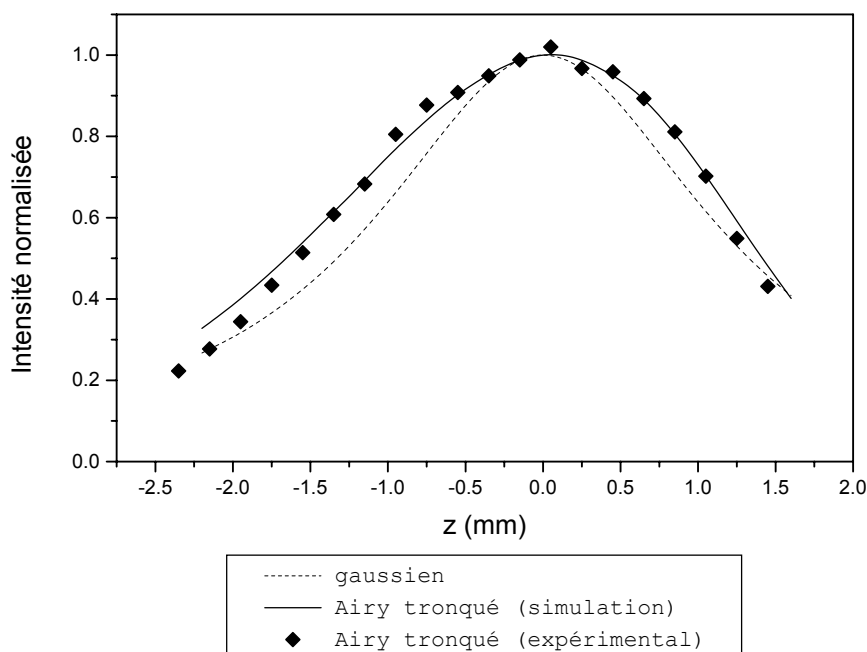


FIG. 4.8 – *Intensité sur l'axe optique à 2ω*

4.3 Simulation numérique de l'autofocalisation dans un échantillon épais

4.3.1 Introduction aux études théoriques de l'autofocalisation

La description du phénomène d'autofocalisation a fait l'objet de nombreux travaux et reste encore un sujet d'intérêt aujourd'hui car c'est un problème électromagnétique complexe. Comme nous l'avons déjà vu au paragraphe 1.4.3, le phénomène d'autofocalisation donne lieu, de manière générale à une déformation du faisceau incident. Nous ne parlerons pas ici des déformations à petite échelle mais uniquement de l'autofocalisation globale. Une simple description d'optique géométrique [115, 6], permet de prévoir qu'au delà d'une certaine puissance critique la diffraction du faisceau est compensée par le phénomène d'autofocalisation. Cette puissance critique délimite trois types de régime d'autofocalisation qui ont mené à des approches différentes du point de vue de la modélisation (pour plus de précisions sur la définition et l'estimation de la puissance critique, voir l'annexe B).

Lorsque la puissance du faisceau est inférieure à la puissance critique, le faisceau diffracte quasi-normalement mais subit une déformation auto-induite au voisinage de son point de focalisation, là où la densité de puissance est la plus importante. C'est le cas de figure adopté pour mesurer l'indice de réfraction non-linéaire avec la méthode de Z-scan et avec les méthodes de distorsion de faisceau en général. Suivant le cas de figure, plusieurs modèles analytiques ont été développés pour décrire la faible distorsion du faisceau (voir paragraphe 2.3).

Si la puissance du faisceau est voisine de la puissance critique, le faisceau peut se trouver auto-guidé dans un milieu uniforme. C'est le cas des solitons spatiaux. Le traitement électromagnétique d'un tel cas utilise l'équation de Helmholtz non-linéaire. Dans ce cas de figure très particulier, des solutions analytiques peuvent alors être dérivées dans le cas paraxial (équation parabolique ou équation de Schrödinger non-linéaire) [115], ainsi que dans le cas de l'équation de Helmholtz non-linéaire non-paraxiale [116].

Enfin, dans le cas où la puissance est supérieure à la puissance critique, beaucoup d'études théoriques utilisent un formalisme basé sur l'équation de Schrödinger non-linéaire,

donc sur une théorie scalaire et paraxiale [117, 118, 119, 120]. Ce modèle permet de décrire correctement l'autofocalisation lorsque la puissance n'est pas trop élevée et permet de déterminer approximativement la position du foyer d'autofocalisation, lieu où le faisceau atteint une intensité particulièrement élevée menant en pratique à un endommagement. En revanche, ce modèle n'est pas physique car il prédit une évolution d'intensité sur l'axe optique ayant une asymptote verticale. En effet, au voisinage du point de focalisation, l'approximation paraxiale devient abusive.

En toute rigueur, pour des puissances bien supérieures à la puissance critique, il n'est plus possible de faire une hypothèse de paraxialité. En outre, la description scalaire devient également fautive. Il est alors nécessaire de considérer le problème vectoriel complet, sans hypothèses de paraxialité, et où la nature tensorielle du terme non-linéaire doit être également prise en compte². En abandonnant l'hypothèse de paraxialité, des méthodes de propagation de faisceau ont été développées et ont permis de constater que l'intensité au centre du faisceau ne diverge pas, mais qu'elle oscille au cours de sa propagation, pouvant atteindre des valeurs allant de 10 à plusieurs centaines de fois l'intensité initiale du faisceau. C'est le cas de la méthode de Feit et Fleck [107, 124], récemment modifiée par Chamorro-Posada et al. [125] pour obtenir une méthode plus exacte mais deux fois moins rapide. Plus récemment, des travaux ont encore affiné la description de l'autofocalisation en abandonnant également l'hypothèse scalaire [126, 127, 128], montrant par exemple qu'un faisceau incident polarisé circulairement adopte petit à petit une polarisation elliptique au cours de son autofocalisation et perd progressivement sa symétrie de révolution [126]. Tous ces modèles non-paraxiaux concordent pour décrire une faible autofocalisation et la propagation dans les zones où l'intensité sur l'axe optique reste proche de l'intensité initiale du faisceau. Ils prédisent également tous une oscillation spatiale du faisceau et la formation de plusieurs foyers intermédiaires atteignant de très grandes valeurs d'intensité sur l'axe optique. En revanche, ils ne concordent plus du tout sur les positions des maxima d'intensité et sur les amplitudes des sur-intensités. La description du phénomène d'autofocalisation pour des puissances supérieures à la puissance critique n'est encore qu'un problème partiellement résolu.

Dans notre cas de figure, la puissance reste bien inférieure à la puissance critique et

²Pour avoir une idée de la complexité que prend l'équation de propagation, voir les travaux de Crognani, Ciattoni et de leurs collaborateurs [121, 122, 123]

le faisceau incident n'est pas trop focalisé. L'hypothèse scalaire paraxiale reste valide. Pour décrire la propagation d'un faisceau quelconque dans un milieu non-linéaire épais, nous avons réalisé un code de propagation basé sur la méthode de Feit et Fleck que nous avons adapté pour le cas d'une symétrie cylindrique. Cette méthode semble le meilleur compromis en terme de précision et de temps de calcul dans notre cas.

4.3.2 Méthode de Feit et Fleck en symétrie cylindrique

Le modèle de Feit et Fleck fait l'approximation que l'équation de Helmholtz scalaire non-linéaire est vérifiée par l'amplitude complexe du champ électrique. L'hypothèse d'un indice de réfraction non-uniforme est introduite. Cette équation est de la forme suivante dans le cas d'une symétrie cylindrique et d'une invariance par rotation autour de l'axe optique :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial E}{\partial r} + \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} + \frac{\omega^2}{c^2} n^2(\omega, r, z) E = 0 \quad (4.11)$$

L'annexe D reprend la démarche de Feit et Fleck dans le cas d'une symétrie cylindrique afin de mieux comprendre les différentes approximations faites dans ce modèle. Reprenant la relation D.12, l'amplitude du champ électrique U à une position $z + \Delta z$ s'exprime en fonction de l'amplitude du champ électrique à la position z suivant :

$$\begin{aligned} U(r, z + \Delta z) = \exp \left[i \frac{\Delta z}{2} \left(\frac{\nabla_T^2}{(\nabla_T^2 + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} \right) \right] \exp(i \Delta z \chi) \\ \times \exp \left[i \frac{\Delta z}{2} \left(\frac{\nabla_T^2}{(\nabla_T^2 + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} \right) \right] U(r, z) + o(\Delta z^3) \end{aligned} \quad (4.12)$$

La relation précédente peut s'écrire sous la forme condensée suivante :

$$U(r, z + \Delta z) = PLPU(r, z) \quad (4.13)$$

Les opérateurs P et L sont alors de la forme :

$$P = \exp \left[i \frac{\Delta z}{2} \left(\frac{\nabla_T^2}{(\nabla_T^2 + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} \right) \right] \quad (4.14)$$

$$L = \exp(i \Delta z \chi) \quad (4.15)$$

Rappelons que k représente l'amplitude du vecteur d'onde dans le milieu, le paramètre $\chi = k(n(r, z)/n_0 - 1)$ et que l'on peut écrire par ailleurs que $n(r, z) = n_0 +$

$\gamma I(r, z)$ ³. L'opérateur P représente ici un opérateur de propagation en milieu linéaire sur une distance $\Delta z/2$. L'opérateur L représente, quant à lui, l'introduction du déphasage non-uniforme induit sur la distance Δz par l'effet Kerr. Pour un pas Δz suffisamment petit, on suppose que ce déphasage est constant sur toute la tranche Δz et a été induit par la répartition d'amplitude "centrale" du champ $U(r, z + \Delta z/2)$. L'opérateur de propagation P est ensuite appliqué de nouveau pour propager le faisceau en milieu linéaire sur une distance $\Delta z/2$. Ce principe de propagation pas à pas en milieu non-linéaire est connu sous le nom anglo-saxon de "split-step propagation method".

Afin de réaliser numériquement la propagation par l'opérateur P , il est plus commode de passer dans l'espace de Fourier. Dans notre cas de la symétrie cylindrique, la transformation de Hankel d'ordre 0 est utilisée. La phase de propagation sur une distance $\Delta z/2$ revient alors à multiplier la transformée de Hankel du champ par la transformée de Hankel de l'opérateur P , c'est à dire \hat{P} qui prend la forme suivante (D) :

$$\hat{P} = \exp \left[i \frac{\Delta z}{2} \left(\frac{-(2\pi\sigma)^2}{(-(2\pi\sigma)^2 + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} \right) \right] \quad (4.16)$$

Le schéma de propagation illustré à la figure 4.9 représente de manière explicite le coeur de l'algorithme de propagation que nous avons réalisé. Le symbole \otimes désigne une multiplication par les opérateurs \hat{P} ou L . Les acronymes FHT et IFHT signifient "Fast Hankel Transform" et "Inverse Fast Hankel Transform". La transformation de Hankel numérique FFTLog décrite au paragraphe 4.2.4 a été utilisée pour estimer les transformations de Hankel nécessaires à cet algorithme avec un gain de temps de calcul considérable. En effet, pour résoudre le problème de la configuration de Z-scan, il sera nécessaire d'effectuer 4 transformations de Hankel par tranche dans l'échantillon qui en comptera plusieurs centaines, et ce pour autant de positions de l'échantillon nécessaires à décrire correctement une courbe de Z-scan, c'est à dire une centaine de points. L'approximation d'une symétrie circulaire et l'utilisation de la transformation de Hankel rapide est donc indispensable pour éviter des simulations numériques de plusieurs heures par courbes de Z-scan. Typiquement, pour un échantillonnage logarithmique transversal de 10000 points, un échantillon de 5 mm et un pas Δz de 50 μm , il faut moins de 15 min à un microprocesseur Pentium 1,2 GHz pour simuler une courbe de transmission normalisée de 100 points.

³Un des nombreux intérêts de ces simulations, c'est qu'une toute autre dépendance peut être envisagée : un effet de saturation, des non-linéarités d'ordre supérieur, etc...

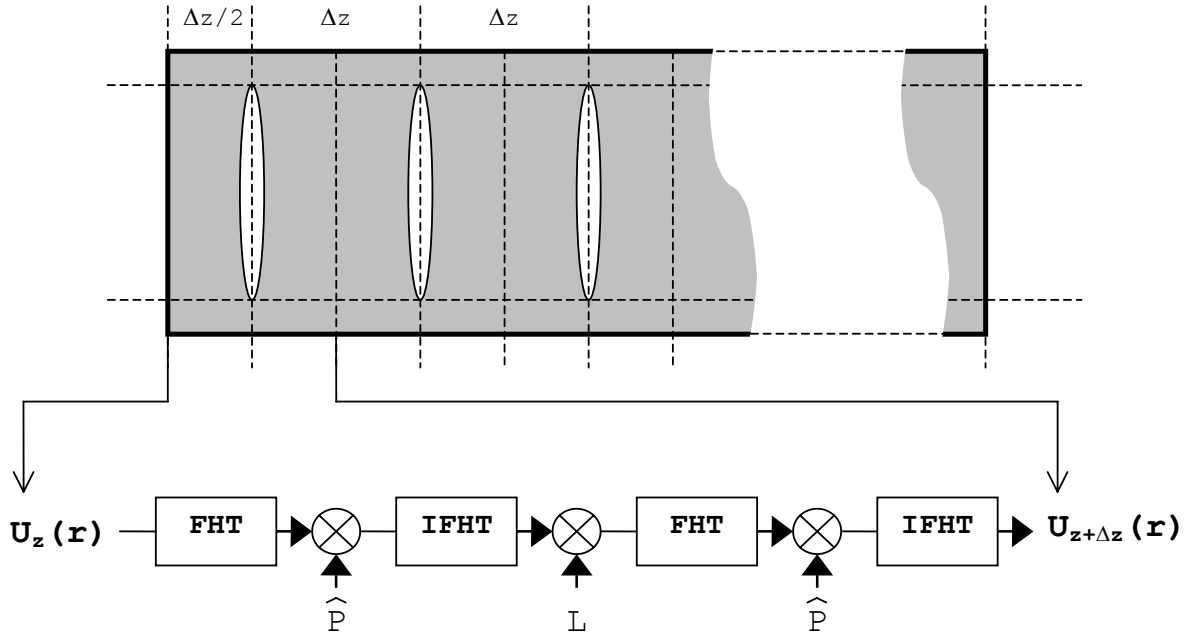


FIG. 4.9 – Représentation schématique d'une propagation sur une petite distance Δz à l'aide de notre algorithme

Dans notre algorithme, nous travaillerons toujours avec une amplitude complexe du champ normalisée par rapport à sa valeur en $(0, 0)$, c'est à dire dans le plan de focalisation et sur l'axe optique. Le paramètre non-linéaire injecté dans les simulations représente donc toujours la variation d'indice non-linéaire $\Delta n = \gamma I(0, 0)$. Dans ce cas, le paramètre χ peut s'écrire sous la forme :

$$\chi = \frac{2\pi}{\lambda} \Delta n \frac{I(r, z)}{I(0, 0)} = \frac{2\pi}{\lambda} \Delta n \left| \frac{U(r, z)}{U(0, 0)} \right|^2 \quad (4.17)$$

Les courbes de transmission normalisée en configuration de Z-scan sont alors simplement obtenues en propageant, à l'aide de cet algorithme, l'amplitude complexe du faisceau obtenue pour une position z avec l'algorithme précédent. La propagation est effectuée avec des pas Δz sur toute l'épaisseur de l'échantillon. L'intégrale de Fresnel de l'amplitude complexe du champ à la sortie de l'échantillon est évaluée ensuite numériquement en $r = 0$. Ceci correspond à une propagation sur la distance séparant la face arrière de l'échantillon du plan du diaphragme du détecteur.

Il faut noter que la condition principale de validité de ce modèle est de conserver

un incrément Δz faible comparée à la vitesse d'évolution en z du faisceau dans l'échantillon. Dans ce but, le profil spatial du faisceau lors d'une simulation d'une courbe de transmission normalisée en configuration de Z-scan est sauvegardé pour vérifier que le régime d'autofocalisation n'introduit pas de variations trop rapides devant la valeur de l'incrément Δz choisie.

4.3.3 Simulations dans le cas d'un faisceau gaussien

Dans cette partie, nous allons comparer les résultats de simulations dans le cas d'un faisceau gaussien avec les différents modèles analytiques présentés au chapitre 2. Ceci permettra, d'une part, de vérifier le bon fonctionnement de notre algorithme dans quelques cas particuliers et d'autre part, d'avoir une idée plus claire des limites de validité de chaque modèle analytique.

Cas d'un faible déphasage non-linéaire

Dans ce cas particulier, les modèles de Sheik-Bahae et al. et Hermann et McDuff sont valables, respectivement dans le cas d'un échantillon d'épaisseur L inférieure à la longueur de Rayleigh du faisceau [40] et d'un échantillon d'épaisseur quelconque. Toutes les simulations suivantes sont effectuées avec un faisceau gaussien de longueur d'onde 1064 nm et de rayon à $1/e^2$ au point de focalisation égal à $w_0 = 15\text{ }\mu\text{m}$. Ceci correspond à une longueur de Rayleigh z_R de $0,66\text{ mm}$. La variation d'indice maximale sur l'axe optique a été choisie égale à $\Delta n = 10^{-5}$. Utilisant le paramètre β introduit dans le modèle de Hermann et McDuff pour quantifier le déphasage non-linéaire maximal sur l'axe optique, ceci correspond à un déphasage d'environ $\pi/30$. La figure 4.10 représente les courbes de transmission normalisée obtenues à l'aide de notre algorithme et des modèles de Sheik-Bahae et al. et d'Hermann et McDuff.

Pour une épaisseur d'échantillon inférieure à 1 mm , c'est à dire légèrement supérieure à la longueur de Rayleigh du faisceau, les trois modèles concordent parfaitement bien, si ce n'est que le modèle de Sheik-Bahae, valable dans le cas d'échantillons fins, est légèrement décalé en z . Ceci est normal puisque ce modèle ne tient pas compte du décalage du point de focalisation dû à la traversée de l'échantillon. En revanche, il est clair que pour des échantillons d'épaisseur supérieure à la longueur de Rayleigh, le modèle de Sheik-Bahae et al. n'est plus du tout adapté. La condition de validité $L < z_R$ évoquée par Sheik-Bahae

et al. est bien vérifiée. Pour une épaisseur bien supérieure à la longueur de Rayleigh, nos simulations concordent parfaitement avec le modèle analytique de Hermann et McDuff.

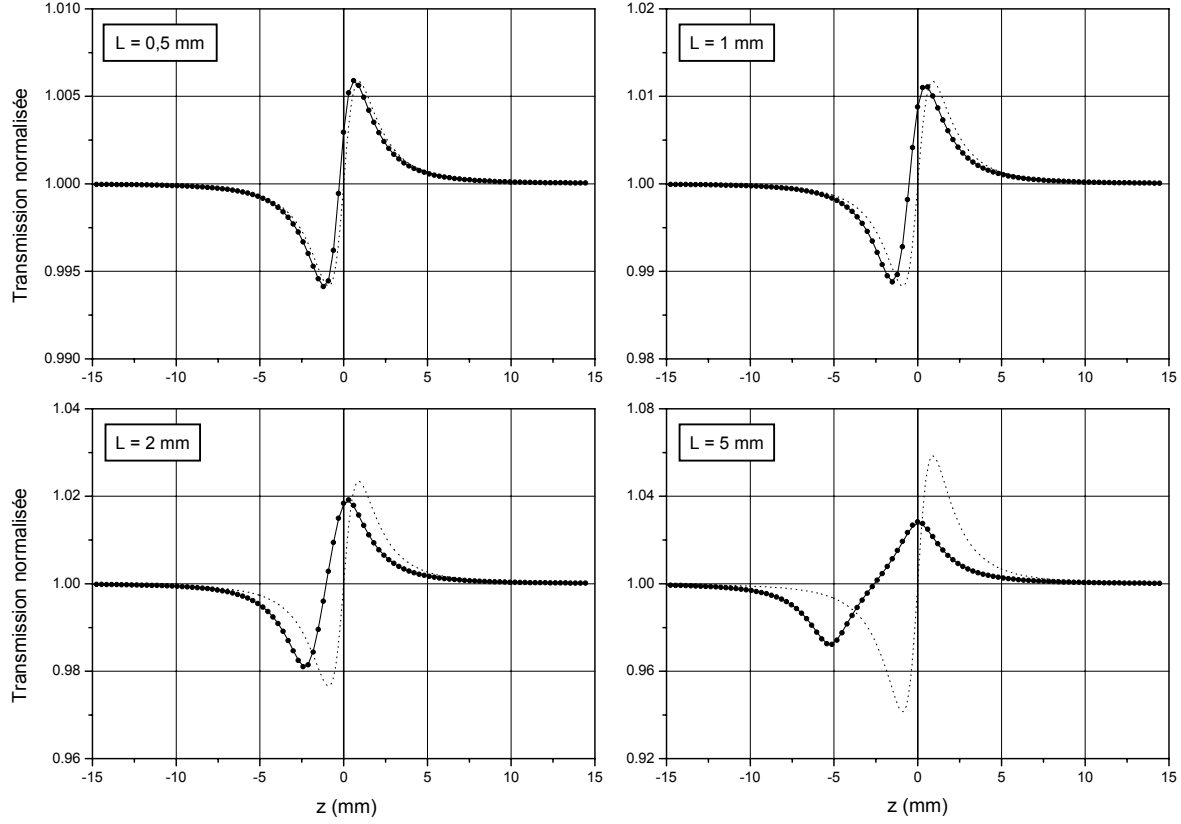


FIG. 4.10 – Comparaison des simulations numériques effectuées à l'aide de la méthode de Feit et Fleck (points) et avec les modèles de Sheik-Bahae et al. (pointillés) et d'Hermann et McDuff (trait continu)

Cas d'un fort déphasage non-linéaire

Dans le cas d'un échantillon fin et d'un déphasage non-linéaire important, nous avons vu au chapitre 2 que Samad et al. ont développé un modèle analytique adapté. Nous allons également comparer les résultats de notre algorithme avec ce modèle. Nous avons déjà montré dans le chapitre 2 que le modèle de Sheik-Bahae et al. et celui de Samad et al. commencent à diverger notablement pour des déphasages non-linéaires supérieurs à $\pi/2$, pour lesquels une forte dissymétrie des courbes de transmission normalisée commence à apparaître. Dans le cas d'échantillons fins, le déphasage est supposé constant le long de l'axe optique dans l'échantillon. Celui-ci est évalué par le paramètre $\Delta\phi_0 = \frac{2\pi}{\lambda} \Delta n L$. Les

figures 4.11 et 4.12 représentent des simulations effectuées pour un fort déphasage de π obtenu sur une épaisseur d'échantillon de $0,2\text{ mm}$ et 2 mm avec notre algorithme et le modèle analytique de Samad et al. Sur ces figures, l'évolution de l'intensité sur l'axe optique dans l'échantillon a également été représentée dans le cas où le point de focalisation est sur la face d'entrée de l'échantillon, ceci dans le but de surveiller les limites de validité de nos simulations dans chacun des cas.

La figure 4.11 montre un très bon accord des deux modèles, malgré le fait que l'intensité sur l'axe optique dans l'échantillon croît de manière notable. En effet, le modèle de Samad et al. ne prend pas en compte les éventuelles variations d'intensité dans l'échantillon. Ce modèle considère simplement que le faisceau incident est fortement déphasé lors de son passage dans l'échantillon. Cependant, il est raisonnable de penser que cet effet n'a que peu d'influence sur le comportement du faisceau en champ lointain devant l'effet déterminant du déphasage, toujours plus pénalisant en terme de perturbation de la propagation.

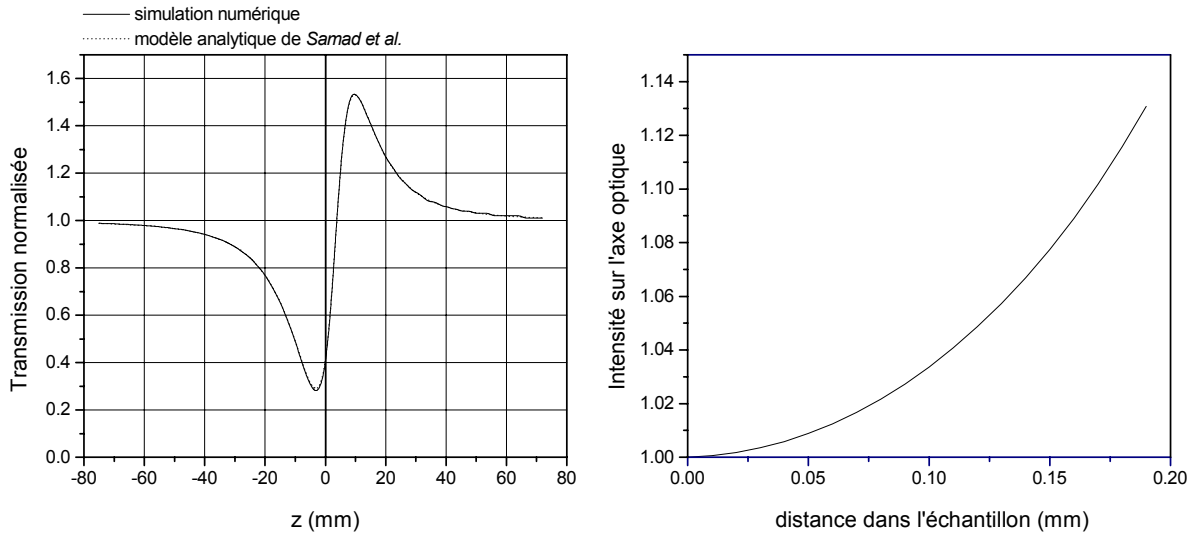


FIG. 4.11 – Comparaison des simulations numériques effectués à l'aide de la méthode de Feit et Fleck avec le modèle de Samad et al. pour $\Delta\phi_0 = \pi$ et $L = 0,2\text{ mm}$

Sur la figure 4.12, lorsque le déphasage est obtenu sur une distance plus élevée, le modèle de Samad et al. prédit, bien évidemment, la même courbe de transmission normalisée. En revanche, nos simulations numériques montrent un léger creusement du minimum de la courbe de transmission normalisée, certainement dû au fait que l'approximation d'échan-

tillon fin n'est plus vraiment vérifiée. Par ailleurs, il faut rester très critique dans ce cas sur la validité des deux modèles. En effet, l'intensité dans l'échantillon atteint une valeur plus de 200 fois supérieure à l'intensité initiale et un foyer intermédiaire apparaît dans l'échantillon. La puissance critique d'autofocalisation est donc largement dépassée et nous avons vu que dans ce cas, le modèle de Feit et Fleck est insuffisant pour décrire avec précision ce qui se passe dans l'échantillon. En outre, d'un aspect purement pratique, ce genre de sur-intensité provoquerait sans aucun doute un endommagement de l'échantillon, rendant toute étude expérimentale de Z-scan impossible pour ce régime.

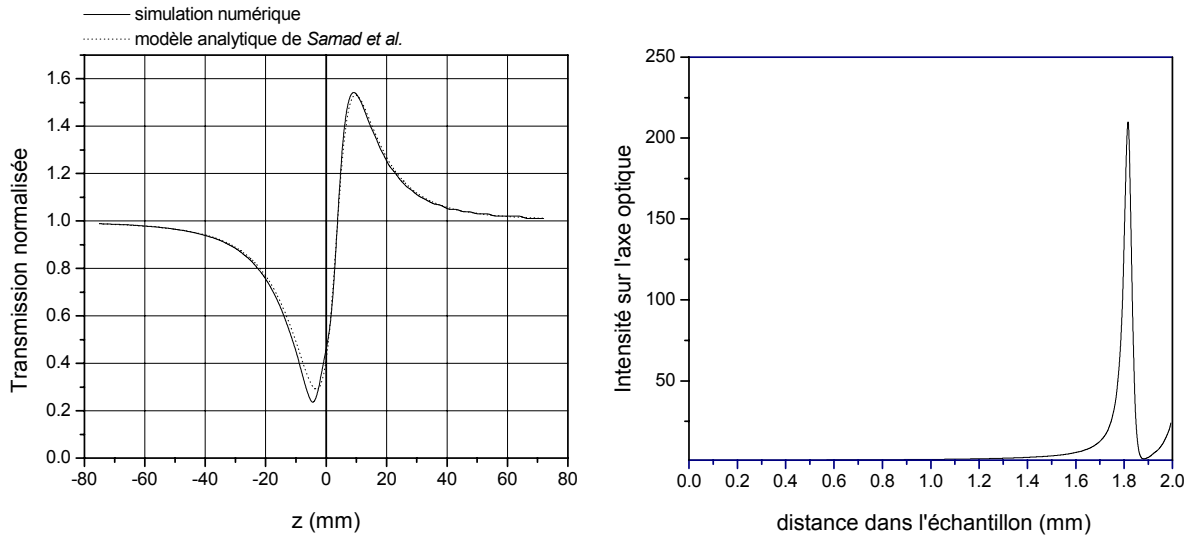


FIG. 4.12 – Comparaison des simulations numériques effectués à l'aide de la méthode de Feit et Fleck avec le modèle de Samad et al. pour $\Delta\phi_0 = \pi$ et $L = 2\text{ mm}$

La figure 4.13 représente les limites de validité des différentes expressions analytiques développées dans le cas de faisceau gaussien. Sur ce schéma, la limite de validité du modèle de Hermann et McDuff a été placée à $\beta = 1$, or il faut garder à l'esprit que l'approximation faite par Hermann et McDuff correspond à $\beta \ll 1$. Pour illustrer ce propos, notons que Chapple et al. ont montré qu'en incluant dans leur modèle le second ordre en β , on constate une augmentation d'environ 10% sur la valeur du maximum de la courbe de transmission normalisée pour une valeur de β de seulement 0,7 [61].

Notre algorithme permet donc de décrire tous les cas de figure de propagation en configuration de Z-scan et rejoint les différents modèles analytiques dans le cas d'un faisceau gaussien. En outre, même si sa validité devient discutable dans le cas de forts déphasages

non-linéaires, cette méthode numérique permet de surveiller l'évolution du faisceau dans l'échantillon et ainsi de mieux prévoir les risques de mauvaises interprétations et d'erreur de modèle.

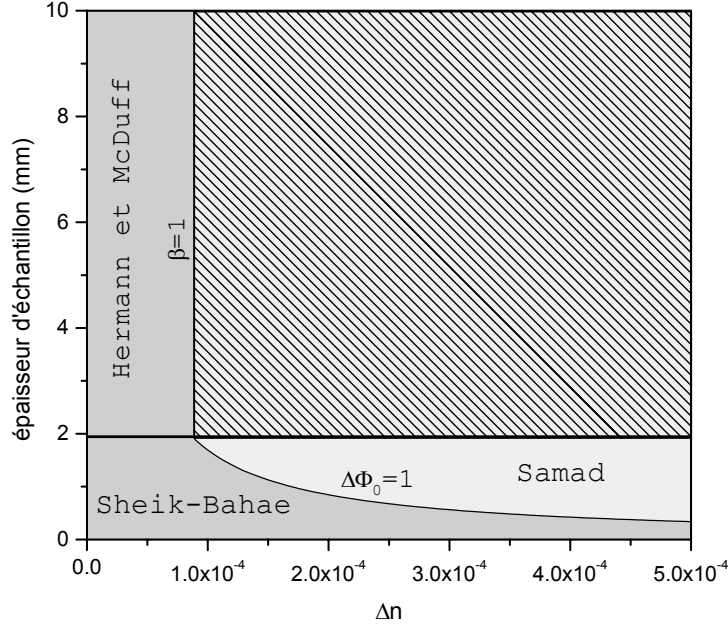


FIG. 4.13 – Limite de validité des différents modèles analytiques dans le cas d'un faisceau gaussien de longueur d'onde 1064 nm et de rayon à $1/e^2$ égal à $15 \mu\text{m}$ (zone foncée : déphasage < 1 , zone claire : déphasage > 1 , zone hachurée : pas d'expression analytique disponible)

4.3.4 Simulations en présence d'absorption

Absorption linéaire

Dans le développement de leur modèle analytique, Hermann et McDuff font l'hypothèse d'un coefficient d'absorption linéaire α_0 nul. Dans le cas d'une silice possédant une très faible quantité d'impuretés, cette condition est vérifiée car le coefficient d'absorption linéaire α_0 est de l'ordre de 10^{-5} cm^{-1} dans la zone de transparence, c'est à dire entre $0,2 \mu\text{m}$ et environ $2 \mu\text{m}$. Notons que vers $1,4 \mu\text{m}$, il est courant d'observer un pic d'absorption dans la silice, dû à la présence de liaisons $-\text{OH}$ [36]. Pour la plupart des verres silicates (voir annexe E), le coefficient d'absorption reste inférieur à 10^{-2} cm^{-1} entre 500 et 1000 nm et inférieur à 10^{-1} cm^{-1} à 2000 nm , mais il peut atteindre quelques unités

dans le très proche UV, voire, bien évidemment, de très grandes valeurs hors des zones de transparence du matériau. Pour des matériaux vitreux particuliers comme des chalcogénures, des verres dopés ou des verres lasers, l'absorption peut atteindre de très grandes valeurs et ces valeurs sont également très dépendantes de la longueur d'onde [36].

L'algorithme de propagation décrit précédemment permet également d'intégrer l'effet de l'absorption linéaire sur les courbes de transmission normalisée. Pour cela, et par définition du coefficient d'absorption linéaire, il suffit de multiplier l'opérateur $L(r)$ par le terme d'absorption : $\exp(-\alpha_0 \Delta z)$.

Des courbes de transmission normalisée ont été tracées à la figure 4.14, dans le cas d'un faisceau gaussien de rayon à $1/e^2$ égal à $15 \mu m$, d'un échantillon épais de $5 mm$ et d'une variation d'indice $\Delta n = 10^{-5}$. La première courbe représente le cas où l'absorption est nulle (modèle d'Hermann et McDuff). Les deux autres courbes ont été simulées numériquement avec $\alpha_0 = 0,1 cm^{-1}$ et $\alpha_0 = 0,2 cm^{-1}$.

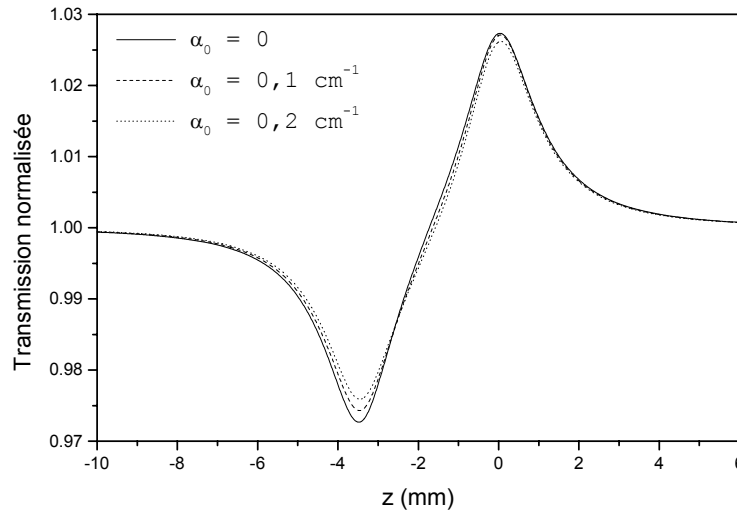


FIG. 4.14 – *Simulations numériques en présence d'absorption linéaire*

L'absorption linéaire a tendance à réduire la profondeur du minimum de la courbe de transmission normalisée. Cet effet est tout à fait compréhensible puisque ce point est obtenu lorsque le faisceau est focalisé sur la face arrière de l'échantillon. Pour cette position, le faisceau a parcouru la quasi totalité de l'échantillon absorbant, induisant un déphasage non-linéaire plus faible que s'il n'y avait pas eu d'absorption. Cet effet reste faible

puisque'il ne change que d'environ 10% la valeur de la transmission normalisée pour une valeur de l'absorption environ 10 fois supérieure à celle de la plupart des verres optiques.

En revanche, il faudra être très prudent pour des longueurs d'ondes limites ou pour des échantillons épais obtenus à partir de matériaux dopés comme des verres laser. Cet effet, pourtant linéaire, peut fortement déformer les courbes de transmission normalisée et en fausser l'interprétation. Par ailleurs, cet effet aura la même influence quelle que soit la valeur de l'indice non-linéaire et l'intensité incidente du faisceau, c'est à dire qu'un travail à forte intensité dans un échantillon très non-linéaire ne masquera pas l'influence de l'absorption linéaire. Dans le cas d'une forte absorption linéaire⁴, il est indispensable de tenir compte du phénomène puisque l'on ne peut pas s'en débarrasser.

Absorption non-linéaire

Comme nous l'avons déjà évoqué au chapitre 2, l'absorption non-linéaire peut également déformer les courbes de transmission normalisée. Dans ce cas, notre algorithme peut également être aisément retouché pour inclure l'influence d'un tel phénomène, ceci en multipliant l'opérateur $L(r)$ par un terme du type :

$$\exp \left(-\Delta\alpha \Delta z \left| \frac{U(r, z)}{U(0, 0)} \right|^2 \right)$$

$\Delta\alpha = \alpha_2 I(0, 0)$ représente alors ici la variation d'absorption maximale induite dans l'échantillon au point $(r, z) = (0, 0)$. A partir de la connaissance de l'intensité sur l'axe optique en $z = 0$, le coefficient d'absorption non-linéaire α_2 , exprimé en cm/W , pourra être déterminé.

La figure 4.15 représente des simulations numériques effectuées en présence d'absorption non-linéaire. L'indice de réfraction non-linéaire a été choisi égal à $\Delta n = 10^{-5}$. L'évolution de la puissance totale du faisceau à la sortie de l'échantillon a également été représentée.

⁴typiquement supérieure à $0,2 \text{ cm}^{-1}$ pour un échantillon de 5 mm . En effet, de telles conditions engendrent une réduction d'intensité dans l'échantillon égale à $1 - \exp(-0,2 \times 0,5) \approx 10\%$

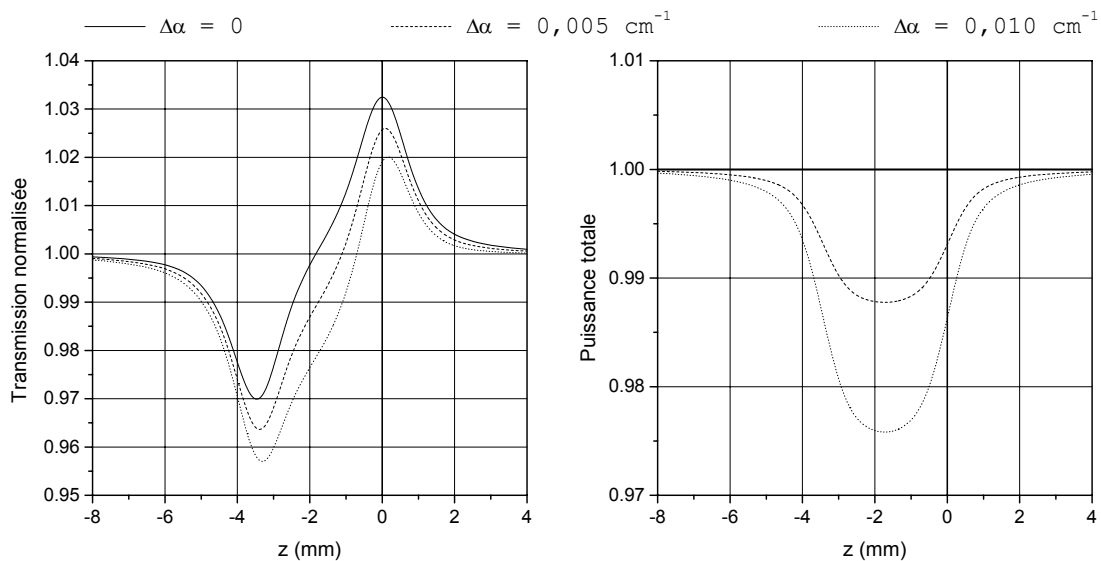


FIG. 4.15 – Simulations numériques en présence d'absorption non-linéaire (faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" de rayon $15 \mu\text{m}$ à $1/e^2$, échantillon de 5 mm)

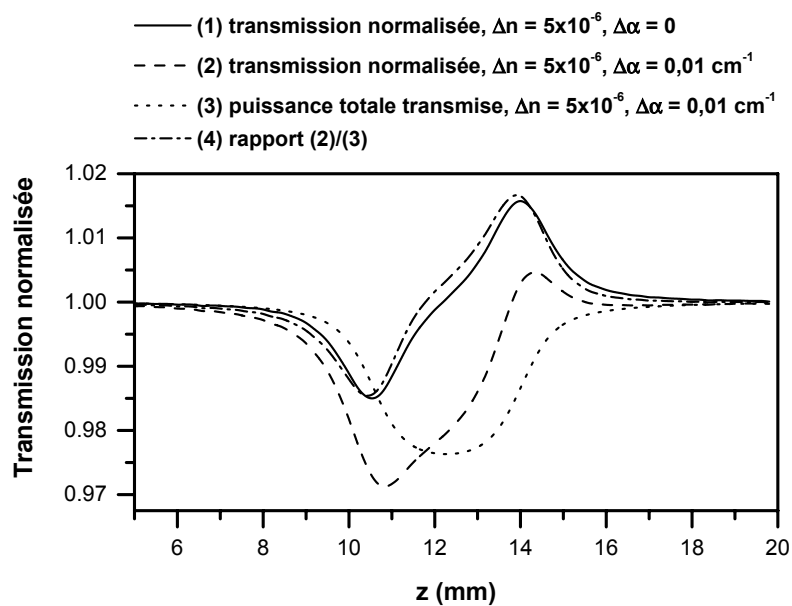


FIG. 4.16 – Simulations numériques en présence ou non d'absorption non-linéaire, puissance transmise normalisée et rapport (faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" de rayon $15 \mu\text{m}$ à $1/e^2$, échantillon de 5 mm)

L'effet de l'absorption non-linéaire déforme fortement les courbes de transmission

normalisée. Pour déterminer conjointement les paramètres Δn et $\Delta\alpha$, il est nécessaire de mesurer préalablement l'évolution de la puissance totale en sortie de l'échantillon, uniquement sensible à l'absorption non-linéaire, pour déterminer $\Delta\alpha$. Cette valeur peut être ensuite utilisée pour simuler les courbes de transmission normalisée et en déduire Δn .

La figure 4.16 montre qu'il est nécessaire de procéder ainsi pour déterminer conjointement les deux paramètres Δn et $\Delta\alpha$. Lorsque la courbe de transmission normalisée est trop déformée par le phénomène d'absorption non-linéaire, le rapport entre la transmission normalisée et la puissance totale ne permet pas de retrouver exactement la courbe de transmission en l'absence d'absorption non-linéaire. Ne pas procéder ainsi suppose que l'absorption non-linéaire n'a aucune influence sur le déphasage introduit par la réfraction non-linéaire. Or, cette approximation est abusive lorsque le phénomène d'absorption devient important et ce pour les mêmes raisons que dans le cas de l'absorption linéaire traité précédemment.

4.3.5 Simulations dans le cas d'un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée"

Cas d'un échantillon fin

Tout d'abord, considérant un échantillon fin devant la longueur de Rayleigh du faisceau, nous allons comparer les résultats obtenus dans le cas gaussien avec le modèle Sheik-Bahae et al. et dans le cas d'un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" avec notre algorithme. La figure 4.17 représente tout d'abord le profil du faisceau au point de focalisation dans les deux cas. Les paramètres du faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" ont été choisis pour que l'intégrale bidimensionnelle de la répartition d'intensité au point de focalisation soit la même qu'un faisceau gaussien de rayon w_0 à $1/e^2$ de $15\mu m$ ⁵. Ainsi, à puissance totale égale, les deux faisceaux auront également une intensité sur l'axe optique identique.

⁵C'est à dire qu'ils possèdent la même "surface effective", égale à : $\pi w_0^2/2$

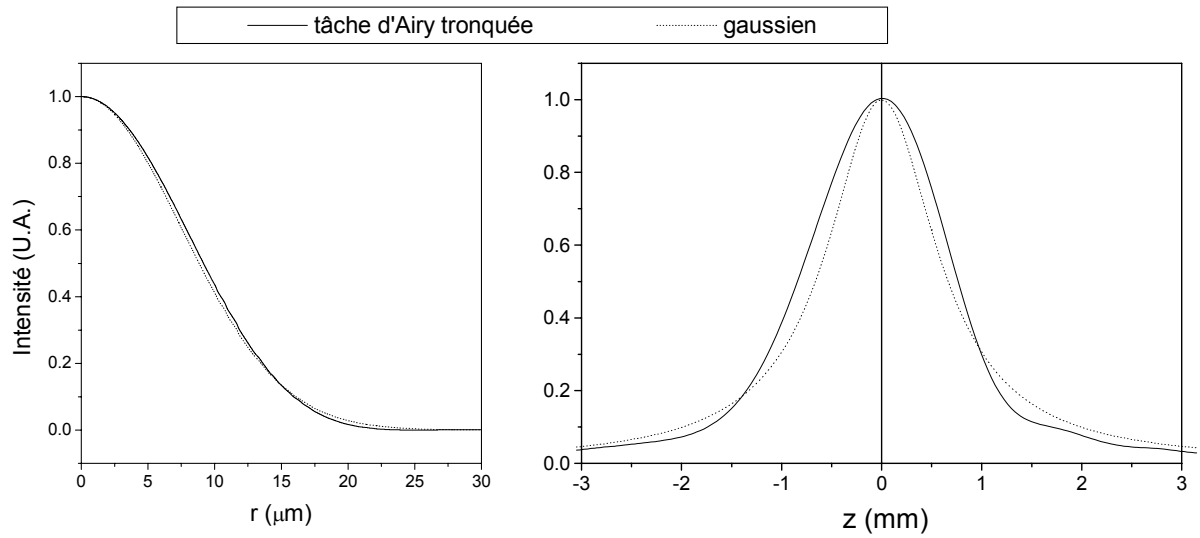


FIG. 4.17 – *Faisceau gaussien et faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" de même "surface effective" au point de focalisation*

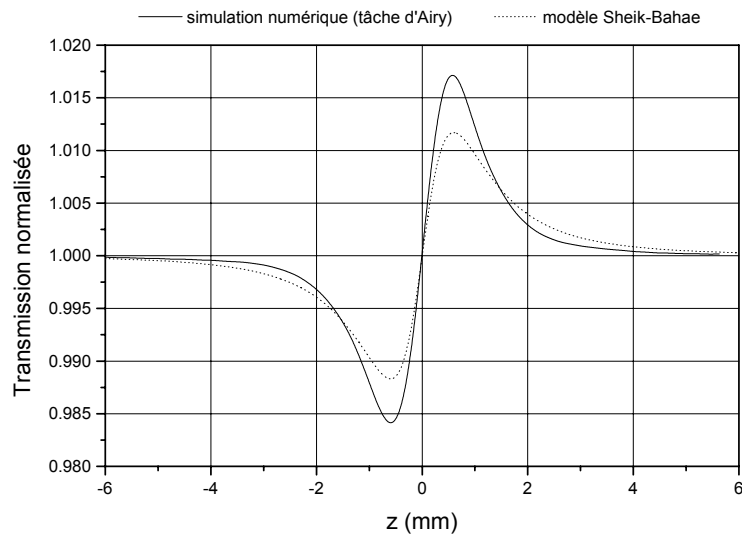


FIG. 4.18 – *Transmission normalisée dans le cas d'un faisceau gaussien et d'un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" de même "surface effective" au point de focalisation*

Les deux faisceaux possèdent des répartitions d'intensité au point de focalisation très proches. En revanche, on constate une profondeur de champ plus importante dans le cas du faisceau de type "tâche d'Airy tronquée", comme nous l'avons déjà constaté dans le

chapitre 3. Dans ces conditions les courbes de transmission normalisée obtenues sont représentées à la figure 4.18.

Dans le cas d'un échantillon fin, la différence de transmission normalisée est environ 1,4 fois supérieure pour le faisceau de type "tâche d'Airy tronquée", ce qui rejoint les résultats de Rhee et al. [63]. Ceci montre bien à quel point ce type de méthode est extrêmement sensible à la répartition spatiale radiale et longitudinale du faisceau. Ce genre de considération est rarement abordé dans la littérature, alors que le modèle gaussien est presque systématiquement adopté. Rares sont les études qui présentent des mesures du profil radial au point de focalisation et encore plus rares sont les études qui présentent l'évolution du profil spatial le long de l'axe optique.

Cas d'un échantillon épais

La profondeur de champ du faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" est plus importante et dans le cas d'un échantillon épais, cette zone de forte intensité du faisceau peut se retrouver partiellement ou entièrement dans l'échantillon. Rien ne permet de dire que le rapport de sensibilité trouvé précédemment sera conservé, et, à notre connaissance, ceci n'a jamais été étudié.

A l'aide de notre algorithme de propagation, la différence de transmission normalisée a été calculée pour une épaisseur croissante d'échantillon et comparée au modèle de Hermann et McDuff. La figure 4.19 représente la sensibilité de la méthode de Z-scan dans le cas du modèle gaussien de Hermann et McDuff et dans le cas d'un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" possédant, toujours, la même "surface effective". Pour pouvoir effectuer une comparaison et estimer l'erreur commise si le faisceau est considéré gaussien, la sensibilité représentée est définie comme le rapport : $\Delta T/\beta$, où β est le déphasage non-linéaire défini dans le cas gaussien (voir chapitre 2).

Ainsi, l'utilisation d'un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" permet bien d'avoir une meilleure sensibilité, 1,4 fois supérieure dans le cas d'échantillons fins. En revanche, ce gain de sensibilité tend vers 1,16 lorsque l'échantillon devient grand devant la profondeur de champ du faisceau, ce qui, à notre connaissance, n'avait jamais été exploré jusqu'à présent. Cette étude de la sensibilité de la méthode permet de constater que, même dans le cas d'un faisceau non-gaussien contenant peu de modes, faire une approximation

gaussienne peu induire une erreur de 40% sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire. En outre, cette erreur tend vers 16% lorsque l'épaisseur de l'échantillon est très supérieure à la profondeur de champ du faisceau. Dans le cas intermédiaire d'une épaisseur de l'ordre de la profondeur de champ du faisceau, l'erreur commise varie entre ces deux valeurs. On comprend alors qu'il est nécessaire d'utiliser un modèle adapté, comme le notre, qui tienne compte de la vraie nature du faisceau pour éviter des erreurs pouvant aller jusqu'à 40%. En outre, dans le cas d'un faisceau possédant encore plus de modes, cette erreur risque d'être encore plus élevée, tout comme le prévoit Rhee, avec un faisceau de type "top-hat". Dans le cas d'échantillons fins, l'erreur peut atteindre ainsi 250% !

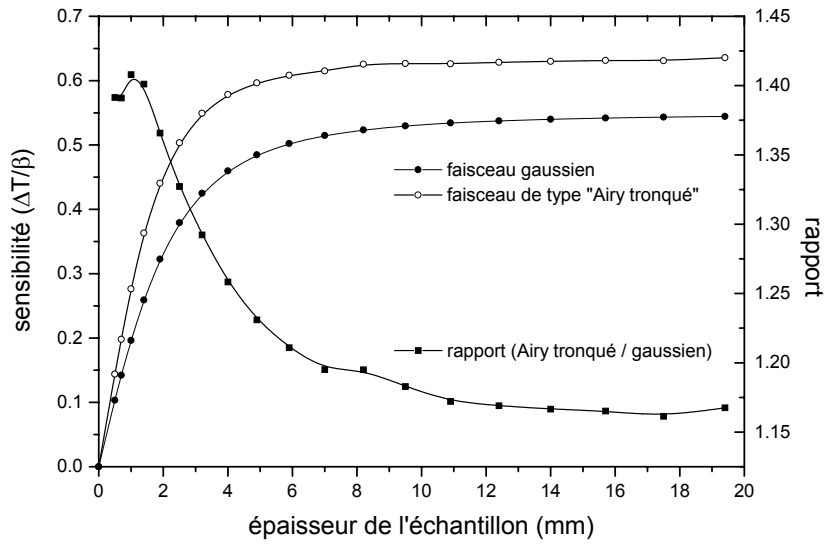


FIG. 4.19 – Sensibilité de la méthode pour un faisceau gaussien et un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" (rayon à $1/e^2$ au point de focalisation : $15\ \mu\text{m}$)

4.3.6 Linéarité de la méthode en fonction de Δn

Nous avons vu que lorsque le déphasage non-linéaire dans l'échantillon devient trop important, les courbes de transmission normalisée perdent leur symétrie. La figure 4.20 montre l'évolution des extrema de transmission normalisée en fonction de la variation d'indice Δn .

Lorsque la variation d'indice Δn devient trop importante, l'évolution des extrema de transmission normalisée n'est plus linéaire. Par ailleurs, le minimum et le maximum évo-

lument différemment. En revanche, pour une variation d'indice inférieure à 10^{-5} , les deux extrema évoluent de façon symétrique et linéaire. En outre, pour une telle variation d'indice, les courbes de transmission normalisée recalées par rapport à la variation d'indice⁶ se superposent exactement avec une erreur maximale de 2,5% en $z = 0$. Ainsi, lorsque la variation d'indice Δn reste inférieure à 10^{-5} , une seule simulation suffit et la valeur de Δn peut être ajustée de la manière suivante pour concorder avec les résultats expérimentaux :

$$T(z, \Delta n_{exp}) = 1 + \frac{\Delta n_{exp}}{\Delta n_{simu}} (T(z, \Delta n_{simu}) - 1) \quad (4.18)$$

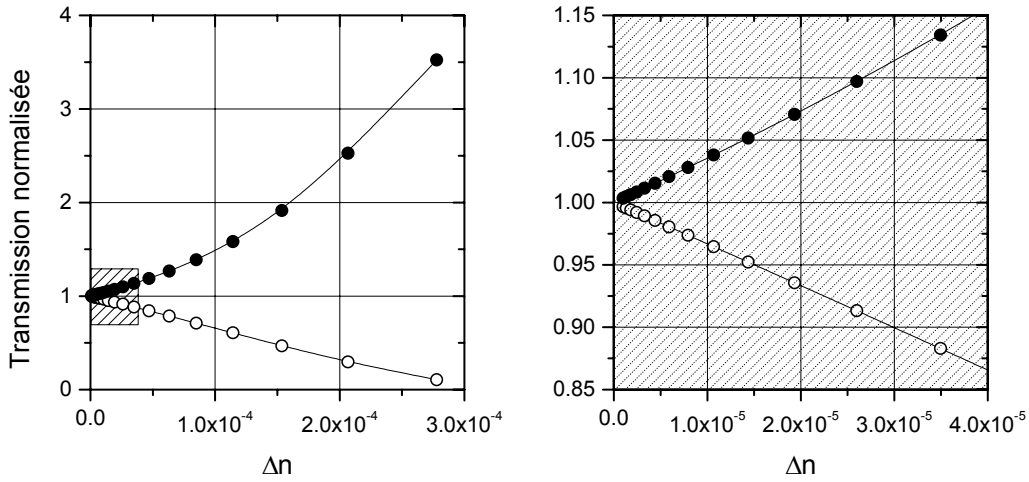


FIG. 4.20 – Evolution des extrema de transmission normalisée en fonction de la variation d'indice Δn dans le cas d'un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" et d'un échantillon de 5 mm

Dans le cas contraire, d'autres simulations sont nécessaires pour effectuer l'ajustement avec les résultats expérimentaux. Dans notre configuration expérimentale, la variation d'indice maximum dans l'échantillon ne dépassera pas 5×10^{-6} , et la formule 4.18 sera utilisée. Par ailleurs, nous verrons dans le chapitre suivant que le comportement non-linéaire de la méthode lorsque $\Delta n > 10^{-5}$ induit une réponse non-linéaire de la transmission normalisée instantanée. Ceci doit être pris en compte dans l'interprétation des mesures, comme nous le verrons dans le dernier chapitre.

⁶C'est à dire le rapport $(T(z) - 1)/\Delta n$.

4.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons exposé le principe des simulations numériques que nous avons utilisées pour exploiter les mesures réalisées à l'aide du banc de métrologie de l'indice de réfraction non-linéaire mis en place à l'Institut Fresnel.

Grâce à une simulation du faisceau incident utilisant l'intégrale de Fresnel, nous pouvons simuler la propagation de tout type de faisceau incident, et, notamment, d'un faisceau de type tâche "d'Airy tronquée". Nous avons ainsi pu remarquer que le profil spatial radial d'un tel faisceau est très proche de celui d'un faisceau gaussien. En revanche, les deux faisceaux ne divergent pas de la même façon. En effet, le faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" diverge plus rapidement, mais en champ proche, il présente une profondeur de champ plus importante, d'environ 20%.

Sans aucune retouche des paramètres mesurés sur notre montage et injectés dans les simulations du faisceau incident, nous trouvons un accord parfait radialement et longitudinalement entre nos mesures et nos simulations du faisceau incident. Ceci démontre, d'une part, la grande précision de notre mise en forme, mais aussi la validité de nos mesures et, notamment, de l'étalonnage de la caméra.

Un algorithme de simulation des courbes de transmission normalisée a été également développé. Cet algorithme repose sur une méthode de propagation pas à pas dans un milieu non-linéaire dont l'indice de réfraction dépend de l'intensité incidente. Cette méthode a été mise en oeuvre dans le cas de la symétrie cylindrique. Afin d'effectuer des simulations rapides et sûres, nous utilisons un algorithme de transformation de Hankel rapide, parfaitement adapté à ce genre de problème. L'algorithme ainsi développé permet de propager un faisceau quelconque dans un matériau d'épaisseur quelconque, éventuellement absorbant et possédant des non-linéarités complexes d'amplitude quelconque, pouvant provoquer des variations d'indice de réfraction photo-induites dépendant de l'intensité suivant une loi arbitraire. Dans ces conditions, tout type de configuration de Z-scan peut être envisagé.

A l'aide de cet algorithme très général, nous avons pu étudier les limites de validité des différents modèles analytiques présentés au chapitre 2 et notamment constater

une meilleure sensibilité de la méthode lorsqu'un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" est utilisé au lieu d'un faisceau gaussien. Dans ce cas, le gain de sensibilité varie de 1,4 à 1,16 suivant que l'échantillon est fin ou épais devant la profondeur de champ du faisceau. Lorsque l'approximation gaussienne est employée abusivement, d'importantes erreurs peuvent être commises sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire. Ainsi, comme on pouvait s'y attendre avec une telle méthode, le profil spatial du faisceau incident a une grande influence sur les courbes de transmission normalisée, ce qui est, finalement, peu mis en avant dans beaucoup d'études de Z-scan.

Par ailleurs, l'influence d'autres paramètres comme l'absorption linéaire ou l'absorption non-linéaire ont pu être étudiés, afin de mettre en garde sur leur influence et la manière d'exploiter les courbes de transmission normalisées dans ce cas. Par exemple, il est clair qu'une étude de Z-scan dans un échantillon très absorbant nécessite l'utilisation d'un modèle comme le notre, qui peut tenir compte de l'absorption linéaire ou non-linéaire. Enfin, l'évolution des courbes de transmission normalisée a été étudiée en fonction de la variation d'indice photo-induite, afin de déterminer la plage de linéarité en Δn de la méthode. L'utilisation de cette méthode dans sa plage de linéarité simplifie la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire et permet d'éviter de mauvaises interprétations supplémentaires des courbes expérimentales, comme nous le verrons au chapitre suivant.

Chapitre 5

Interprétation des mesures, étude des erreurs et études de l'indice de réfraction non-linéaire de la silice et du BK7

Le montage expérimental optimisé, décrit au chapitre 3, nous permet donc de mesurer avec précision des indices de réfraction non-linéaires aussi faibles que celui de la silice. La mise en forme particulière du faisceau permet, en outre, d'avoir une grande stabilité, une bonne symétrie circulaire, une amélioration de la sensibilité de la méthode et permet également un passage très simple de 1064 nm à 532 nm. Par ailleurs, les simulations numériques et les caractérisations expérimentales du faisceau incident sont en parfait accord. Ceci garantit une très bonne adéquation entre les simulations numériques et les mesures de transmission normalisée qui seront réalisées. Toutefois, une analyse plus fine du signal expérimental mesuré va nous permettre de faire le lien entre les courbes simulées et les courbes expérimentales, et notamment d'étudier l'influence du profil temporel des impulsions. D'autre part, nous étudierons l'influence des fluctuations des caractéristiques du faisceau sur la mesure et les erreurs systématiques commises lors des mesures. Enfin, nous présenterons les mesures réalisées dans plusieurs échantillons de silice et dans un verre borosilicate, pour deux longueurs d'ondes différentes (1064 nm et 532 nm) et deux durées d'impulsions légèrement différentes (20 ns et 7 ns).

5.1 Introduction

Le chapitre 3 a permis de présenter le banc de métrologie de l'indice de réfraction non-linéaire qui a été développé à l'Institut Fresnel. Nous avons vu qu'il permet d'avoir une très grande sensibilité qui va nous permettre de mesurer avec précision l'indice de réfraction de la silice, particulièrement faible.

Dans le chapitre 4, nous avons présenté l'algorithme que nous avons réalisé afin de simuler les courbes de transmission normalisées dans une configuration de Z-scan arbitraire. Nous l'avons utilisé afin de mieux comprendre le comportement des courbes de transmission normalisée et, en particulier, d'étudier l'influence de plusieurs paramètres, comme le profil spatial du faisceau incident, l'absorption linéaire, ou l'absorption non-linéaire pour éviter toute mauvaise interprétation.

Il reste maintenant à faire une analyse claire et rigoureuse du signal expérimental mesuré, afin de raccorder correctement les résultats expérimentaux aux simulations numériques. Cette analyse va déboucher sur la définition des paramètres spatio-temporels pertinents à mesurer. Nous en profiterons alors pour étudier l'influence de ces paramètres sur la transmission normalisée, puis l'erreur commise sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire.

Enfin, nous pourrons présenter les résultats des études expérimentales qui ont été menées dans la silice et dans un verre borosilicate (BK7), à deux longueurs d'ondes différentes, et avec deux lasers nanosecondes de durées d'impulsion différentes.

5.2 Analyse du signal expérimental mesuré

Dans le cadre d'une approche métrologique comme la nôtre, l'estimation absolue de l'indice de réfraction non-linéaire nécessite une connaissance rigoureuse des liens entre le déphasage directement mesuré par la méthode de Z-scan, les caractéristiques spatio-temporelles du faisceau incident et l'indice de réfraction non-linéaire γ . Il est également nécessaire de connaître tous ces liens pour savoir quels sont les paramètres pertinents à évaluer, et quels seront leurs influences respectives sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire. Cette section a pour but d'analyser la méthode de mesure d'un

point de vue quantitatif, et de définir les grandeurs physiques nécessaires à la détermination de γ à partir des courbes de transmission normalisée obtenues expérimentalement. Ceci permettra ensuite d'estimer les erreurs sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire par la méthode de Z-scan.

5.2.1 Définition de la transmission normalisée instantanée/intégrée

Dans les différentes études concernant le Z-scan, la **transmission normalisée instantanée** est définie comme le rapport entre la puissance instantanée transmise par le diaphragme en présence d'un échantillon non-linéaire divisée par cette même puissance lorsque les effets non-linéaires sont négligeables, c'est à dire lorsque l'échantillon est présent, mais loin du point de focalisation, où l'intensité maximum dans l'échantillon est faible. Dans notre configuration expérimentale, la transmission normalisée instantanée est définie comme le rapport des puissances transmises par les diaphragmes des voies signal et référence. Ces deux voies étant identiques, l'une avec et l'autre sans échantillon cette définition correspond bien à la définition classique de la transmission normalisée, ainsi qu'à celle de la transmission normalisée calculée numériquement dans cette étude.

Remarque : *D'autres configurations expérimentales utilisent une simple réflexion du faisceau collimaté pour réduire le bruit. Dans cette configuration, la transmission normalisée mesurée est le rapport entre la puissance transmise par le diaphragme et la puissance totale du faisceau incident. Ce genre de configuration permet de s'affranchir des fluctuations uniquement dans le cas où la puissance au centre du faisceau sur le diaphragme est bien corrélée avec la puissance totale du faisceau. Or, expérimentalement, il a été constaté que le dépointé et les fluctuations du diamètre du faisceau au point de focalisation décorrèlent fortement la puissance au centre du faisceau et la puissance totale du faisceau. Seule la configuration expérimentale comportant deux voies de mesure identiques permet réellement de mesurer la transmission normalisée telle qu'elle est définie théoriquement et permet de s'affranchir de toutes les fluctuations, pourvu que les deux voies de mesures soient parfaitement alignées. Dans notre cas, les fluctuations en énergie du laser sont d'environ 1 à 2% en écart-type, tandis que l'énergie mesurée au centre du faisceau sur les deux voies de mesure fluctue d'environ 3 à 4%. Ceci montre que l'énergie transmise par les diaphragmes et l'énergie totale du faisceau ne sont pas très corrélées et donc, l'utilisation d'une voie de référence composée d'une simple réflexion ne suffit pas ici.*

Expérimentalement, c'est l'intégrale temporelle de la puissance transmise qui est mesurée sur chaque voie. Cette configuration a été choisie car l'énergie des impulsions est beaucoup plus stable que leur puissance crête. D'autre part, pour faire une mesure résolue en temps, il faudrait disposer de deux photodiodes rapides possédant une réponse identique pour ne pas dégrader la corrélation entre les voies de mesure. Par ailleurs, le bruit électronique haute fréquence observé sur les détecteurs et le codage sur 8 bits de l'oscilloscope ne permettent pas une résolution suffisante pour faire une mesure correcte des variations de puissance instantanée. C'est donc une transmission normalisée intégrée temporellement qui est mesurée, c'est à dire :

$$T(z) = \frac{\int P_s(z, t) dt}{\int P_r(t) dt} \quad (5.1)$$

où $P_s(z, t)$ représente la puissance instantanée transmise par la voie signal (dépendant donc de la position z de l'échantillon non-linéaire) et $P_r(t)$ la puissance instantanée transmise par la voie de référence sans échantillon.

5.2.2 Expression de la transmission normalisée intégrée en fonction des paramètres du faisceau

D'un point de vue théorique, la transmission normalisée instantanée peut s'écrire sous la forme linéarisée suivante :

$$T(z, t) = \frac{P_s(z, t)}{P_r(t)} = 1 + \Delta n(t) F(z) \quad (5.2)$$

où $F(z)$ désigne une fonction de z qui dépend également de l'indice de réfraction, de l'épaisseur de l'échantillon et des caractéristiques géométriques du faisceau incident. L'expression précédente fait une hypothèse de linéarité des courbes de transmission normalisée en fonction de la variation d'indice instantanée $\Delta n(t)$. Ceci est évident dans le cas d'un faisceau gaussien et du modèle de Sheik-Bahae ou de celui d'Hermann et McDuff (voir le chapitre 2). En revanche, ceci devient faux dans le cas de forts déphasages non-linéaires. La linéarité de la méthode en fonction de la variation d'indice Δn maximum dans l'échantillon a été étudiée numériquement à la fin du chapitre 4. Avec notre faisceau incident, la fonction $F(z)$ a été calculée numériquement pour des valeurs croissantes de Δn . La relation linéaire 5.2 est vérifiée avec une erreur maximale inférieure à $\pm 1\%$ sur les pics de transmission normalisée lorsque la variation d'indice est inférieure à 10^{-5} . Pour une variation d'indice inférieure à cette valeur, les courbes de transmission normalisée ne changent

donc pas de forme, mais sont simplement dilatées proportionnellement à Δn . Pour une variation d'indice de réfraction inférieure à 10^{-5} , nous nous placerons désormais dans le cadre de cette approximation de linéarité de la transmission normalisée en fonction de Δn .

Par ailleurs, si les effets non-linéaires peuvent être considérés comme instantanés, c'est à dire de temps de réponse faible devant la largeur d'impulsion, la variation d'indice peut s'écrire $\Delta n(t) = \gamma I(t)$, où $I(t)$ représente l'intensité instantanée sur l'axe optique au point de focalisation. Ce type d'approximation est clairement vérifiée pour une excitation de durée inférieure à quelques picosecondes, où seuls des phénomènes électroniques rapides sont sollicités. Dans le cas d'impulsions nanosecondes, le phénomène d'électrostriction, ainsi que des effets thermiques peuvent apporter une contribution non-négligeable à la variation d'indice de réfraction. En toute rigueur, la variation d'indice devrait prendre une forme plus compliquée, utilisant un produit de convolution (approximation de filtre linéaire). Notre but est de mesurer un indice de réfraction non-linéaire global, tenant compte de toutes les contributions. Ainsi, nous choisirons d'écrire : $\Delta n(t) = \gamma I(t)$, où γ représente alors la somme de toutes les contributions. Du point de vue temporel, l'indice de réfraction non-linéaire γ pourra donc se décomposer sous la forme de plusieurs termes, certains dépendants de la forme temporelle de l'excitation (par exemple, dans le cas de phénomènes thermiques) et d'autres indépendants (phénomènes électroniques rapides).

Dans ces conditions, la variation d'indice suit linéairement la variation d'intensité $I(t)$. Dans ce cas, la transmission normalisée instantanée prend la forme suivante :

$$T(z, t) = 1 + \gamma I_0 p(t) F(z) \quad (5.3)$$

où $p(t)$ représente le profil temporel de maximum égal à 1 d'une impulsion issue de notre laser et I_0 , l'intensité crête sur l'axe optique au point de focalisation.

Les puissances instantanées reçues par les photodiodes des voies signal et référence sont donc proportionnelles à :

$$P_s(z, t) \propto p(t) \times (1 + \gamma I_0 p(t) F(z)) \quad (5.4)$$

$$P_r(t) \propto p(t) \quad (5.5)$$

Puisque la transmission normalisée mesurée est intégrée temporellement, le signal effectivement mesuré est donc proportionnel à (voir expression 5.1) :

$$T(z) = 1 + \gamma I_0 \frac{\int p^2(t) dt}{\int p(t) dt} \times F(z) \quad (5.6)$$

Par ailleurs, ce n'est pas I_0 qui est mesuré expérimentalement mais l'énergie E d'une impulsion, la répartition spatiale d'énergie au point de focalisation et le profil temporel des impulsions. Ceci nous amène à définir deux paramètres d'intégration temporelle et spatiale. Afin de réduire les erreurs sur la détermination de I_0 , et donc de γ , on introduit une **surface effective de faisceau** S_e au point de focalisation, ainsi qu'une **durée effective d'impulsion** τ_e , définies comme suit :

$$S_e = \iint p_{sp}(x, y) dx dy \quad (5.7)$$

$$\sqrt{\pi} \tau_e = \int p(t) dt \quad (5.8)$$

où $p_{sp}(x, y)$ représente la répartition d'énergie du faisceau incident dans le plan de focalisation (de maximum égal à 1). Notons que τ_e a été défini de telle sorte qu'il représente la demi-largeur à $1/e$ dans le cas d'une impulsion à profil gaussien.

Dans ces conditions, les relations suivantes relient l'énergie totale E , la fluence F_0 et l'intensité crête I_0 sur l'axe optique au point de focalisation et la puissance totale P du faisceau :

$$E = F_0 \times S_e \quad (5.9)$$

$$E = P \times \sqrt{\pi} \tau_e \quad (5.10)$$

$$F_0 = I_0 \times \sqrt{\pi} \tau_e \quad (5.11)$$

Ainsi, l'expression de la transmission normalisée devient :

$$T(z) = 1 + \frac{\gamma E}{S_e} \frac{\int p^2(t) dt}{\pi \tau_e^2} \times F(z) \quad (5.12)$$

En configuration de Z-scan et dans le cas général d'impulsions de profil temporel perturbé (laser multimode longitudinal), il est clair que le paramètre τ_e n'est pas le paramètre le plus judicieux à déterminer expérimentalement puisqu'il reste à évaluer l'intégrale temporelle du profil au carré. Il est plus pertinent et plus juste d'introduire un nouveau paramètre τ'_e défini par :

$$\frac{1}{\sqrt{2\pi} \tau'_e} = \frac{\int p^2(t) dt}{\left(\int p(t) dt\right)^2} \quad (5.13)$$

Notons que ce nouveau paramètre a été défini de telle sorte qu'il représente la demi-largeur à $1/e$ dans le cas d'une impulsion à profil gaussien.

L'expression de la transmission normalisée devient finalement, en fonction des paramètres mesurés expérimentalement et de la fonction $F(z)$:

$$T(z) = 1 + \frac{\gamma E}{\sqrt{2\pi} \tau'_e S_e} \times F(z) \quad (5.14)$$

5.3 Estimation des erreurs

5.3.1 Conséquences des fluctuations du laser sur la transmission normalisée

Dans la suite, nous estimerons l'amplitude de fluctuation d'une grandeur A à l'aide de son écart-type δA . Dans l'hypothèse où les fluctuations des différents paramètres restent faibles et pour une position z fixée, les fluctuations de transmission normalisée peuvent être estimées par différenciation logarithmique de la relation 5.14. On trouve :

$$\frac{\delta T}{T-1} = \frac{\delta E}{E} + \frac{\delta S_e}{S_e} + \frac{\delta \tau'_e}{\tau'_e} + \frac{\delta F(z)}{F(z)} \quad (5.15)$$

Notons que cette relation est pertinente si les différents paramètres ne sont pas corrélés. Dans le cas d'une corrélation entre deux ou plusieurs paramètres dont les effets se compensent, cette relation peut conduire à une surestimation des fluctuations de transmission normalisée.

Or, la fonction $F(z)$ dépend a priori doublement de la profondeur de champ du faisceau. L'amplitude des pics de cette fonction, ainsi que leur largeur en z dépendent de la profondeur de champ. En effet, la profondeur de champ du faisceau est caractéristique de la longueur d'interaction non-linéaire dans le matériau, et donc, de l'amplitude du déphasage non-linéaire induit. En outre, la profondeur de champ est caractéristique de la divergence du faisceau, et donc du comportement en z des courbes de transmission. Pour s'en convaincre, reprenons le modèle de Hermann et McDuff dans le cas des faisceaux gaussiens. Vu notre définition de la fonction $F(z)$, celle-ci vaut, dans le cas du modèle analytique de Hermann et McDuff (voir le chapitre 2) :

$$F(z) = -\frac{\pi}{2} \times \frac{n_0 z_R}{\lambda} \times \ln \left(\frac{9 + v_b^2}{1 + v_b^2} \times \frac{1 + v_a^2}{9 + v_a^2} \right) \quad (5.16)$$

avec $v_a = \zeta_0$ et $v_b = \zeta_0 - \zeta_m$ et si z est la position de la face d'entrée de l'échantillon par rapport au plan de focalisation, on a :

$$\zeta_0 = -\frac{z}{z_R} \quad \text{et} \quad \zeta_m = \frac{L}{n_0 z_R}$$

où n_0 est l'indice linéaire du milieu, L l'épaisseur de l'échantillon et z_R la longueur de Rayleigh du faisceau gaussien.

Dans le cas où $L \gg z_R$, le déphasage non-linéaire effectif dans l'échantillon est proportionnel à la longueur de Rayleigh (voir chapitre 2). Il en sera de même pour les extrema des courbes de transmission normalisée, ce qui est clair sur l'expression de $F(z)$. D'autre part, l'expression 5.14 nous indique qu'à énergie constante, toute variation de la surface effective fera varier les extrema des courbes de transmission normalisée dans le sens inverse ¹.

Ainsi, dans le cas d'échantillon épais devant la longueur de Rayleigh du faisceau, toute fluctuation de surface effective est théoriquement exactement compensée par la fluctuation de longueur de Rayleigh correspondante. Ces fluctuations n'auront donc pas d'influence sur les extrema des courbes de transmission normalisée mais seulement sur la largeur en z des extrema. La figure 5.1 illustre l'évolution des courbes de transmission normalisée pour une épaisseur d'échantillon environ 10 fois supérieure à la longueur de Rayleigh du faisceau et une variation maximum de $\pm 8\%$ du rayon à $1/e$, engendrant une variation de $\pm 16\%$ sur la surface effective et la longueur de Rayleigh du faisceau. Cette variation engendre seulement une altération de la forme des courbes, dont les extrema s'élargissent, tandis que la différence de transmission entre les extrema ne change que de $\pm 1,5\%$.

Le même type de comportement a pu être constaté dans le cas de faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" (figure 5.2). Dans des conditions similaires, c'est à dire avec une épaisseur d'échantillon environ 10 fois supérieure à la profondeur de champ du faisceau, la différence entre les extrema de la courbe varie seulement de $\pm 0,6\%$ pour des variations de surface effective de $\pm 14\%$.

¹Rappelons que pour un faisceau gaussien de rayon w_0 à $1/e$, $z_r = 2\pi w_0^2/\lambda$ et $S_e = \pi w_0^2$

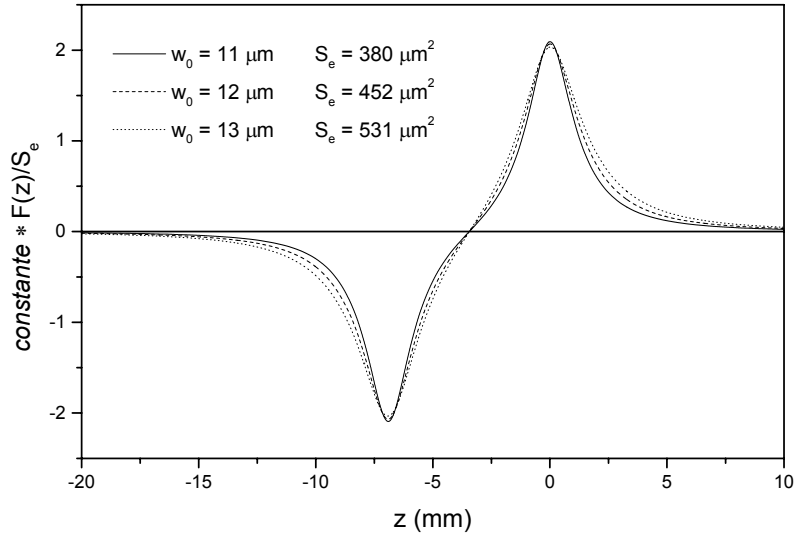


FIG. 5.1 – Allure de la fonction $F(z)$ divisée par S_e pour trois valeurs différentes de surface effective (modèle analytique d'Hermann et McDuff)

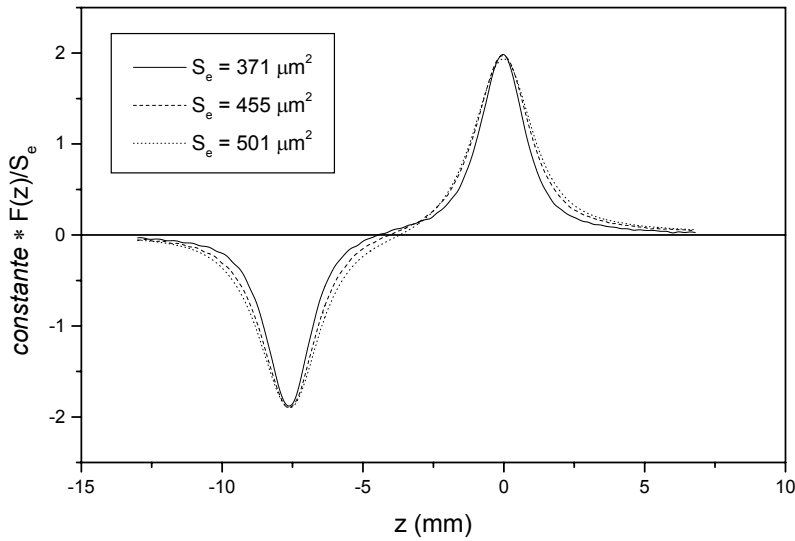


FIG. 5.2 – Allure de la fonction $F(z)$ simulée numériquement pour un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" et divisée par S_e pour trois valeurs différentes de surface effective

Ainsi, dans le cas d'échantillons très épais devant la profondeur de champ du faisceau, les fluctuations ou dérives de surface effective n'auront pas d'influence sur le niveau des extrema de transmission normalisée qui est alors lié principalement à la puissance totale du faisceau incident, pourvu que celui-ci diverge toujours de la même façon, c'est à dire,

qu'il reste de type "tâche d'Airy tronquée", ou gaussien.

Dans le cas d'échantillons très épais, nous venons de voir que la valeur de la transmission normalisée aux extrema est liée principalement à la puissance totale du faisceau, plus exactement à une puissance "effective" définie comme le rapport entre l'énergie totale du faisceau et la durée effective d'impulsion $\sqrt{2\pi} \tau'_e$. Dans ce cas particulier, il semble raisonnable d'écrire que les fluctuations des caractéristiques du laser entraînent une fluctuation des extrema de transmission normalisée caractérisée par :

$$\frac{\delta T}{T-1} = \frac{\delta E}{E} + \frac{\delta \tau'_e}{\tau'_e} \quad (5.17)$$

Expérimentalement, sur un échantillon d'une centaine d'impulsions, l'énergie du faisceau après le filtrage spatial fluctue typiquement de $\pm 4\%$ (écart-type) à 1064 nm . Après avoir effectué une moyenne sur 100 impulsions, l'énergie de dérive jamais plus de $\pm 2\%$ pendant le temps d'acquisition des courbes de transmission normalisée.

La durée d'impulsion effective τ'_e est, quant à elle, calculée numériquement en faisant l'acquisition d'un échantillon de 100 profils temporels. A partir de chaque profil, τ'_e est estimé à l'aide de la relation 5.13. Dans ces conditions, les fluctuations de τ'_e sur 100 impulsions restent inférieures à $\pm 2\%$, tandis que les fluctuations sur la durée effective τ_e estimée à l'aide de la relation 5.8 sont de $\pm 8\%$. Contrairement à τ_e , le paramètre τ'_e est, en effet, issu du rapport entre deux grandeurs corrélés. Cette information permet de constater que la mesure de la transmission intégrée est beaucoup plus intéressante en terme de stabilité. Les fluctuations de τ_e engendreraient une trop grande fluctuation de la transmission normalisée, nécessitant de faire de nombreuses moyennes pour déceler dans ce bruit des variations de transmission de 1 à 2%. En revanche, un certain nombre d'informations temporelles sont perdues dans ce cas, notamment le comportement temporel de l'indice de réfraction non-linéaire.

En conclusion, dans le cas d'échantillons suffisamment épais, la différence de transmission normalisée va suivre essentiellement les fluctuations d'énergie totale et de durée d'impulsion effective τ'_e , ce qui correspond pour une moyenne sur une centaine d'impulsions à des fluctuations d'environ $\pm 2\%$ pour l'énergie et d'environ $\pm 2\%$ pour τ'_e . Ainsi, durant une acquisition complète, la variation de transmission normalisée d'un extrema $(T-1)$ mesurée fluctue théoriquement de $\pm 4\%$, à cause des fluctuations d'énergie du laser et des fluctuations du paramètre temporel effectif τ'_e .

5.3.2 Linéarité en fonction de l'énergie

Dans ce paragraphe, nous étudions expérimentalement la linéarité de la grandeur ΔT en fonction de l'énergie incidente, afin de vérifier qu'aucun autre paramètre spatio-temporel ne varie lorsque l'énergie incidente des impulsions est réglée par rotation de la lame demi-onde. D'autre part, nous pourrions constater également qu'aucun phénomène non-linéaire d'ordre supérieur n'entre en jeu. Enfin, ceci va nous permettre de vérifier que l'approximation de linéarité faite par la relation 5.2 est également vérifiée.

Cette étude a été menée sur un échantillon de silice amorphe de 11 *mm* d'épaisseur afin de se placer le plus près possible de la zone de saturation de la sensibilité de la méthode (voir figure 4.19). Plusieurs acquisitions au même endroit ont été réalisées pour des énergies variant entre 220 et 800 μJ . Les caractérisations du faisceau à l'aide de la caméra CCD et de la photodiode rapide ont donné les résultats suivants sur un échantillon de 100 impulsions :

paramètre	moyenne	écart-type (%)
τ'_e	3,63 <i>ns</i>	$\pm 2\%$
S_e	$4,48 \times 10^{-6} \text{ cm}^2$	$\pm 1,6\%$

Les courbes de transmission obtenues dans ces conditions sont représentées à la figure 5.3. A partir de ces courbes, la différence de transmission normalisée ΔT entre les extrema a été tracée en fonction de la variation d'indice Δn au point de focalisation et sur l'axe optique (voir figure 5.4). La variation d'indice Δn représente ici une moyenne temporelle particulière, telle que $\Delta n = \gamma I_e$ où I_e représente alors l'intensité "effective" calculée comme suit :

$$I_e = \frac{E}{\sqrt{2\pi} \tau'_e S_e} \quad (5.18)$$

ΔT pourra ainsi être comparée aux simulations numériques effectuées parallèlement pour différentes valeurs de Δn , choisies dans la zone explorée expérimentalement (figure 5.4).

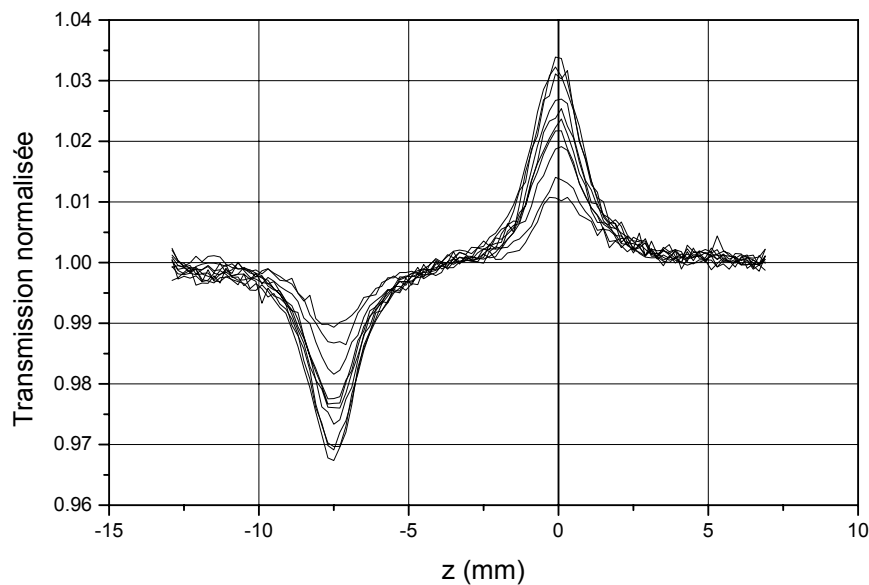


FIG. 5.3 – Courbes de transmission normalisée obtenues sur un échantillon de silice d'épaisseur 11 mm à 1064 nm

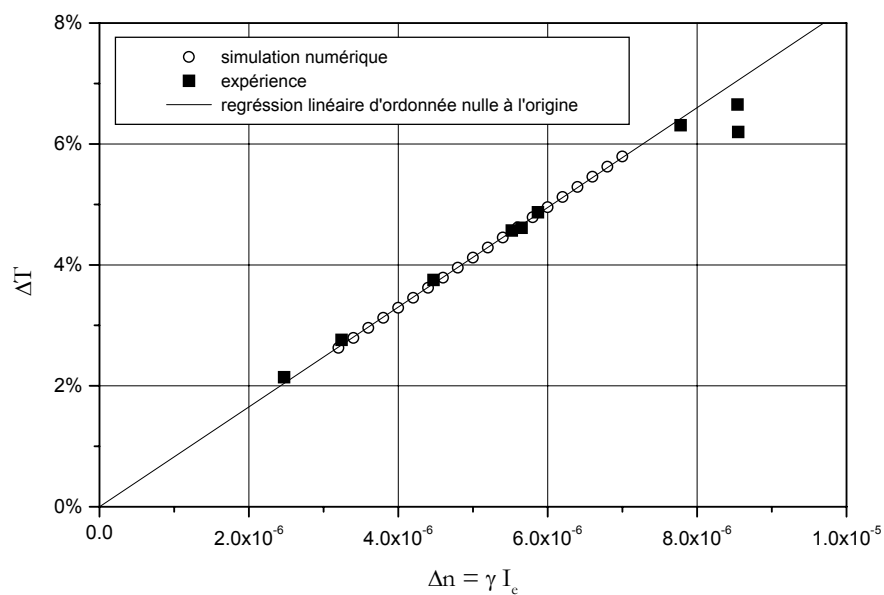


FIG. 5.4 – ΔT en fonction de la variation d'indice moyennée temporellement (expérience, simulation et régression linéaire)

En terme de différence de transmission normalisée ΔT , et pour des échantillons suffisamment épais, on constate une très bonne linéarité de la méthode tant sur le plan

théorique qu'expérimental pour différentes valeurs de l'énergie incidente. Si l'on oublie, pour l'instant, les points extrêmes, un écart maximum d'environ 5% à la régression linéaire a été constaté, ce qui particulièrement faible. Outre le fait que ce résultat témoigne d'une grande stabilité du montage, ceci permet de vérifier que les effets non-linéaires observés sont bien cubiques.

Pour les énergies les plus faibles, la valeur de ΔT commence à être trop faible devant les fluctuations du signal à vide. Les mesures sont alors moins précises. Toutefois, la stabilité du signal à vide nous indique que la variation de transmission normalisée la plus faible qui peut être mesurée est de $\pm 0,05\%$, ce qui, reporté sur la figure 5.4, correspond à une variation d'indice effective de 10^{-6} . D'après les courbes d'évolution de l'intensité sur l'axe optique du faisceau (chapitre 3 et 4), la longueur d'interaction dans l'échantillon est d'environ 2 mm à 1064 nm (largeur à mi-hauteur des courbes d'intensité sur l'axe optique). Ainsi, la détectivité de notre montage est de $\lambda/500$, en terme de variation de chemin optique dans l'échantillon.

Pour les valeurs d'énergie les plus élevées utilisées, une saturation de ΔT semble avoir lieu. Pourtant, la variation d'indice reste encore dans la plage de linéarité (environ 9×10^{-6}). Il ne s'agit donc pas, a priori, d'une erreur sur le modèle numérique utilisé qui reste encore largement valable pour des déphasages non-linéaires aussi faibles. En revanche, lors d'une des deux dernières acquisitions, l'échantillon s'est endommagé. En effet, pour de telles énergies (environ $800\text{ }\mu\text{J}$), la fluence du faisceau sur l'axe optique est égale à 180 J/cm^2 , soit très proche, voire au delà de la fluence typique d'endommagement du matériau. Ce genre de régime est donc particulièrement instable et certains mécanismes supplémentaires entrent très certainement en jeu.

A la lumière de cette étude de linéarité, il est clair que toute détermination précise de l'indice de réfraction non-linéaire dans la silice en régime nanoseconde nécessite de se placer dans un cas de figure optimal qui minimise les fluctuations (échantillon épais) et les risques d'endommagement, tout en conservant un rapport signal sur bruit suffisant, ce qui laisse une marge de manoeuvre finalement assez étroite, mais dans laquelle nous avons constaté une excellente linéarité.

En conclusion de tout ceci, il faut retenir la bonne linéarité et la bonne répétabilité de la mesure. Ceci est principalement dû à la faible dérive en énergie et la faible dérive de τ'_e ,

grandeurs qui ont le plus d'influence sur l'évolution de la transmission normalisée pour un faisceau donné. La dérive de ces grandeurs lors de l'acquisition d'une courbe de transmission normalisée n'entraîne pas d'erreur supérieure à $\pm 2\%$ sur l'énergie et sur τ'_e pour des moyennes sur 100 impulsions, ce qui occasionne une fluctuation maximum de $\pm 4\%$ sur les extrema de transmission normalisée, due aux dérives.

Par ailleurs, notons que si une trop grande dérive est constatée sur la voie de référence, l'acquisition est rejetée. Enfin, la grande majorité des courbes de transmission normalisée présentées dans ce document est en fait une moyenne sur 5 balayages consécutifs dont la bonne répétabilité a été vérifiée. L'incertitude théorique due aux dérives peut donc être, plus raisonnablement, considérée égale à environ $\pm 2\%$. Cette valeur est alors en bon accord avec les résultats de l'étude de linéarité, où, si l'on oublie les points extrêmes dont nous avons déjà parlé, l'écart maximum à la régression linéaire sur les 5 points restants vaut $\pm 2\%$.

5.3.3 Erreurs d'étalonnage

Le paragraphe précédent a permis de mettre en exergue l'influence des dérives pendant l'acquisition des courbes de transmission normalisée. Il reste cependant à savoir quelles sont les erreurs absolues commises sur les mesures de l'énergie, des profils spatiaux et temporels, c'est à dire les erreurs d'étalonnage des appareils de mesure.

En ce qui concerne la mesure de l'énergie, le pyromètre a été étalonné par le constructeur à 1064 nm et est garanti pour fournir une mesure de l'énergie à $\pm 3\%$ à 1064 nm et $\pm 7\%$ à 532 nm .

L'étalonnage de la caméra, à l'aide d'une mire graduée a permis de déterminer la correspondance entre la taille réelle dans le plan objet de l'objectif et les pixels de la caméra. La correspondance vaut : $0,7\text{ }\mu\text{m}/\text{pixel}$. L'erreur sur la détermination de ce paramètre, c'est à dire l'erreur sur l'étalonnage de la caméra est estimée à $\pm 2\%$, ce qui provoquera donc une incertitude absolue de $\pm 4\%$ sur la détermination absolue de la surface effective du faisceau pour une position donnée.

L'erreur absolue sur la détermination du paramètre τ'_e est plus difficile à évaluer. La principale source d'erreur possible peut venir d'un manque de résolution temporelle. La photodiode utilisée possède une temps de réponse de 17 ps et offre ainsi une bonne réso-

lution temporelle. L'oscilloscope, quant à lui, possède une bande passante de 500 MHz et limite ainsi la résolution de notre dispositif de mesure du profil temporel des impulsions. Pour tenter d'estimer l'erreur absolue sur la détermination du paramètre τ'_e , nous avons déterminé théoriquement le type de profil temporel d'une impulsion simulant le comportement d'un laser multimode longitudinal comportant 10 modes longitudinaux d'amplitudes identiques, mais déphasés aléatoirement. Le type de profil temporel obtenu est représenté à la figure 5.5. Un filtrage passe-bas de fréquence de coupure égale à 500 MHz a été appliqué à ce profil. Le paramètre τ'_e a ensuite été évalué pour les deux profils temporels, l'un non-filtré, et l'autre ayant subi le filtrage passe-bas simulant la coupure par l'oscilloscope. Une erreur typique de 5% a été constatée entre les deux estimations pour plusieurs profils obtenus en utilisant le même principe avec des déphasages aléatoires différents.

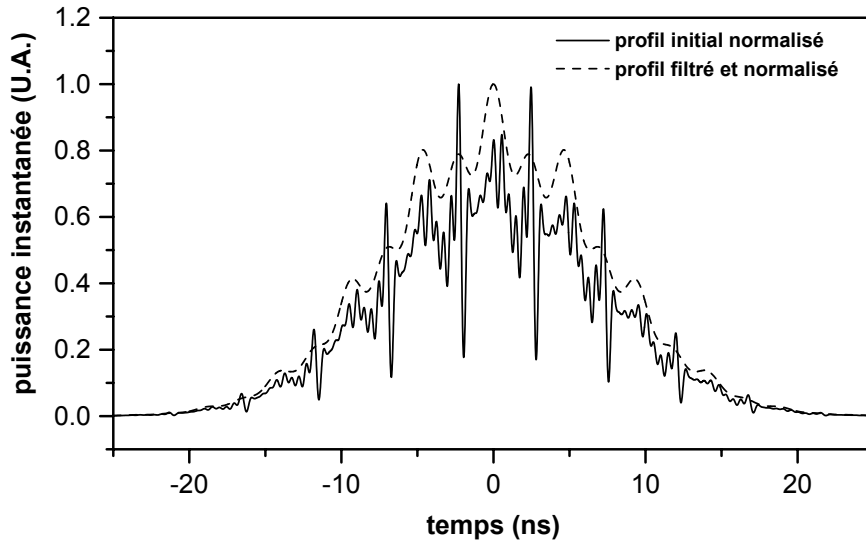


FIG. 5.5 – Profil temporel issu d'interférences entre 10 modes longitudinaux de même amplitude mais déphasés aléatoirement et profil filtré

Cette estimation ne fait pas office de démonstration, mais elle permet de constater que, dans le cas d'un profil temporel particulièrement perturbé par des fluctuations hautes fréquences, la coupure par l'oscilloscope ne perturbe pas trop l'estimation du paramètre τ'_e . En revanche, il est clair que la coupure par l'oscilloscope provoque une erreur plus importante sur la détermination du paramètre τ_e . Tout ceci est dû au fait, une fois de plus, que le paramètre τ'_e est issu du rapport entre deux grandeurs corrélées, dépendantes du profil temporel des impulsions.

Ainsi, les erreurs dues aux étalonnages des appareils de mesure et à la résolution temporelle de l'oscilloscope induisent une erreur absolue sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire estimée à environ $\pm 12\%$ à 1064 nm et $\pm 16\%$ à 1064 nm .

5.3.4 Autre source d'erreur : utilisation hors de la plage de linéarité en Δn

Ce paragraphe a pour but de mettre en garde sur une autre source d'erreur potentielle lorsque la méthode de Z-scan est utilisée hors de sa plage de linéarité en Δn , c'est à dire, pour une variation d'indice typiquement supérieure à 10^{-5} . Dans ce cas, le minimum de transmission normalisée commence à saturer, tandis que le maximum croît de plus en plus vite lorsque Δn augmente (voir chapitre 4). Ce comportement non-linéaire de la transmission normalisée instantanée en fonction de Δn peut être simulé aisément avec notre algorithme et la fonction $F(z)$ adaptée peut être déterminée avec précision. Toutefois, il est intéressant de voir quel impact ce comportement non-linéaire peut avoir sur la transmission normalisée intégrée, c'est à dire sur la transmission mesurée expérimentalement.

Reprenons, par exemple, la courbe d'évolution du pic de transmission normalisée T_p en fonction de Δn tracée à la fin du chapitre 4. En toute rigueur, celle-ci n'est donc pas linéaire en fonction de Δn . En revanche, elle peut être approximée par un polynôme du second degré en Δn (voir figure 5.6). Ce polynôme du second degré a été estimé égal à :

$$T_p = 1 + 2,36 \times 10^3 \Delta n + 2,40 \times 10^7 (\Delta n)^2 \quad (5.19)$$

D'après la relation 5.19, l'évolution temporelle du pic de transmission normalisée instantané peut être tracé en fonction du temps. Considérant une variation d'intensité gaussienne de largeur 10 ns à $1/e$, la variation de transmission normalisée instantanée a été représentée à la figure 5.7 en fonction du temps, dans le cas de l'approximation linéaire et de l'approximation parabolique. Le cas d'une impulsion gaussienne perturbée par les interférences entre deux modes longitudinaux de même amplitude a également été représenté. Pour se placer dans des conditions où l'approximation linéaire et l'approximation parabolique commencent à diverger, une variation d'indice de réfraction maximale de 10^{-4} a été choisie. Celle-ci induit, dans notre configuration, un pic de transmission normalisée instantanée égal à environ 1,48.

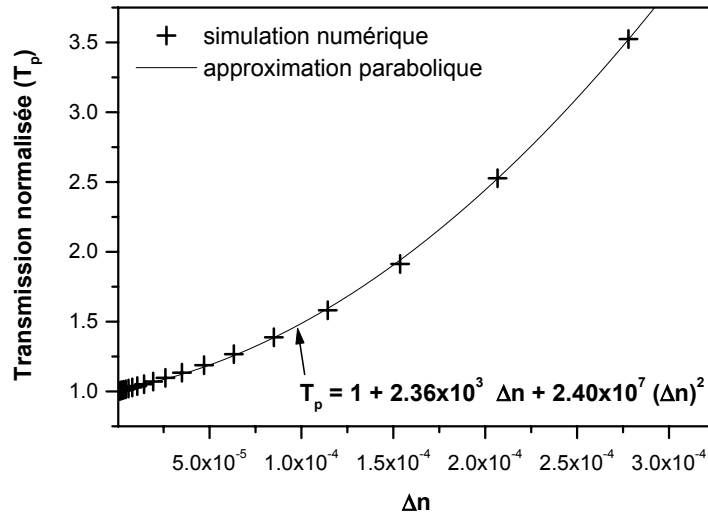


FIG. 5.6 – Evolution du pic de transmission normalisée T_p en fonction de Δn pour notre faisceau de type "tâche d'Airy tronquée", dans la silice, à 1064 nm et pour un échantillon de 5 mm

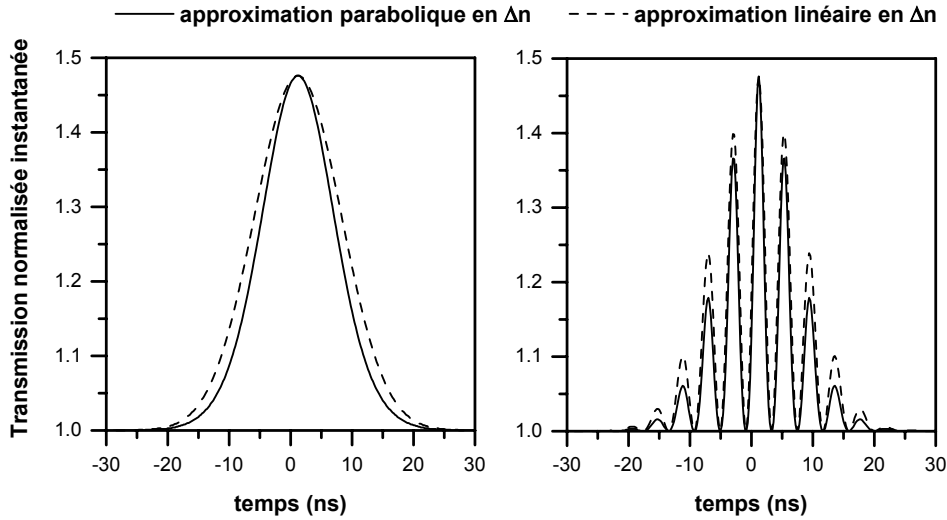


FIG. 5.7 – Evolution du pic de transmission normalisée en fonction du temps pour une variation d'indice $\Delta n = 10^{-4}$. Le cas d'une variation d'intensité à profil gaussien est représentée à gauche. Le cas d'une variation d'intensité perturbée par des interférences entre deux modes longitudinaux est représentée à droite.

Il est donc clair que le comportement non-linéaire de la transmission normalisée ins-

tantannée en Δn implique un comportement temporel qui ne suit pas la variation temporelle de l'intensité incidente. Pour un profil d'intensité gaussien et si l'approximation d'une variation linéaire de la transmission normalisée est faite, comme dans le paragraphe 5.2.2, la variation de transmission au maximum $T_p - 1$ intégrée temporellement diffère d'un rapport 1,17 par rapport à la variation de transmission intégrée en tenant compte du comportement parabolique. Dans le cas d'un faisceau perturbé par des interférences entre deux modes longitudinaux (comme c'est le cas avec notre laser), ce rapport atteint même 1,31. Ainsi, même lorsqu'une simulation numérique adaptée des courbes de transmission normalisée instantanée est effectuée, le comportement non-linéaire de la transmission en fonction de Δn induit une erreur sur l'estimation de la transmission normalisée mesurée expérimentalement. Cette erreur sur l'estimation de la transmission intégrée se répercute directement sur l'estimation de l'indice de réfraction non-linéaire et peut ainsi atteindre 30% lorsque le profil temporel des impulsions est perturbé, comme c'est le cas ici.

Il est donc préférable d'utiliser cette méthode de mesure dans son régime linéaire en Δn , sous peine de compliquer encore un peu plus l'analyse des résultats ou de commettre des erreurs importantes sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire. Dans ce travail, la variation d'indice de réfraction est toujours inférieure à 10^{-5} .

5.4 Etude dans la silice avec une durée d'impulsion de 20 ns

5.4.1 Conditions de l'étude

Une première série de mesures a été menée à l'aide du laser Nd :YAG Q-Switch délivrant des impulsions d'environ 20 ns de durée effective totale à $1/e$. Cette étude a concerné 4 échantillons de silice de nature différente (Hérasil² et Suprasil³) et de fabricants différents (Schott, Heraeus et Corning). Les 4 échantillons possèdent la même épaisseur de 5 mm, afin de se placer dans les mêmes conditions et faire une étude comparative. Chaque courbe de transmission normalisée présentée est issue d'une moyenne sur 5 balayages consécutifs exécutés au même point. Durant un balayage, chaque valeur de la transmission normalisée est issue d'une moyenne sur une centaine d'impulsions, afin de s'affranchir des fluctuations d'énergie impulsion après impulsion.

Le faisceau incident a été caractérisé spatialement et temporellement avant et après l'étude. L'énergie moyenne sur 500 impulsions a été mesurée avant et après chaque série de 5 balayages et corrigée de la réflexion sur la face avant de l'échantillon. Cette énergie moyenne n'a pas varié à $\pm 2\%$ près durant l'ensemble de l'étude. Les conditions expérimentales de l'étude sont résumées dans le tableau 5.1.

Longueur d'onde	λ [nm]	1064	532
Energie	E [mJ]	0,740	0,288
Surface effective	S_e [cm ²]	$3,9 \times 10^{-6}$	$3,9 \times 10^{-6}$
Fluence sur l'axe optique	F [J/cm ²]	190	74
Durée d'impulsion effective	τ'_e [ns]	11,1	6,8
Intensité effective sur l'axe optique	I_e [GW/cm ²]	6,8	4,3

TAB. 5.1 – Conditions expérimentales moyennes

²quartz fondu

³silice synthétique

5.4.2 Résultats à 1ω

Une première série de mesures a été menée sur les 4 échantillons à la longueur d'onde de 1064 nm . Les courbes expérimentales et les simulations correspondantes sont représentées à la figure 5.8.

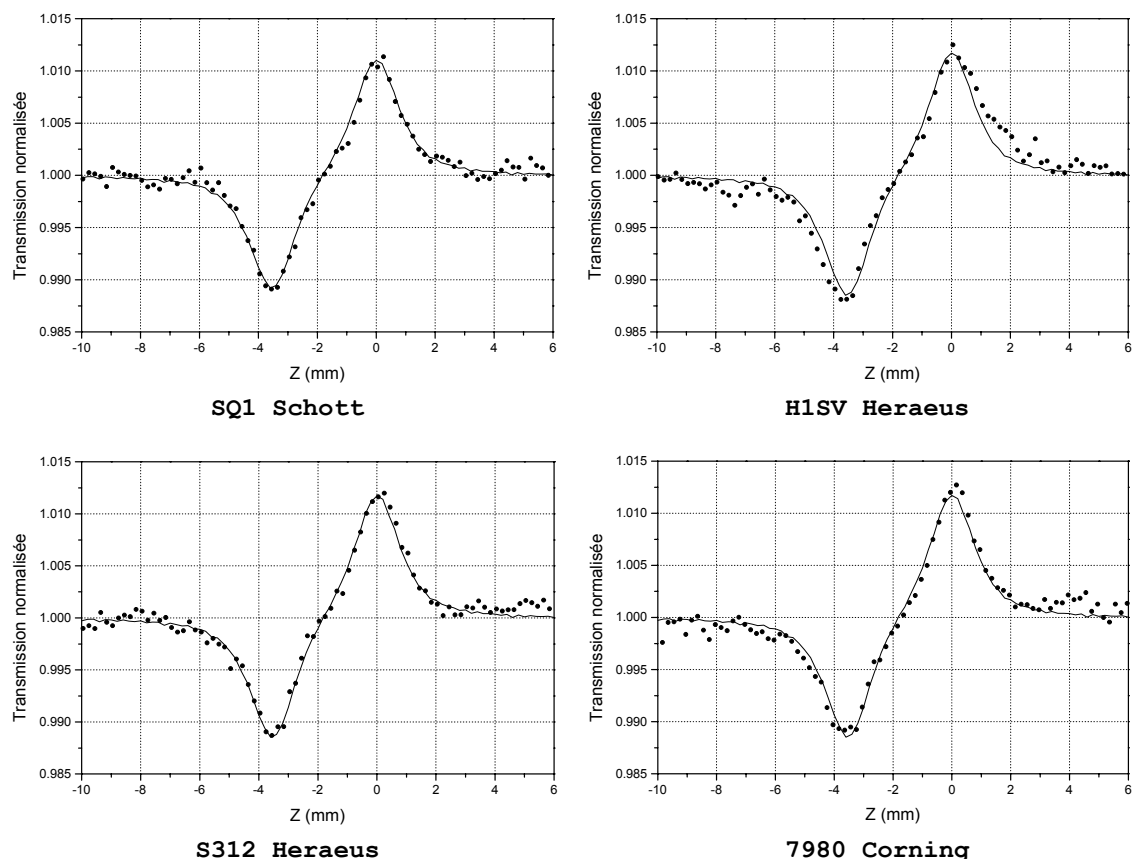


FIG. 5.8 – Courbes de transmission normalisée obtenues avec 4 échantillons de silice à 1064 nm (points : expérimental, lignes continues : simulation)

Comme on peut le voir sur ces courbes expérimentales, la sensibilité de notre montage est particulièrement bonne, puisque les fluctuations de la transmission normalisée "à vide" sont inférieures à 0,01 en écart-type. Par ailleurs, un très bon accord est constaté entre les points de mesure et les simulations. Il est important de noter que les simulations ont été ajustées aux résultats expérimentaux en ne faisant varier que le paramètre Δn . Tous les autres paramètres ont été mesurés et utilisés pour la simulation du faisceau incident. Ce dernier a été comparé aux résultats expérimentaux (voir chapitre 4), puis injecté dans l'algorithme de propagation en milieu non-linéaire.

5.4.3 Résultats à 2ω

Après installation du cristal doubleur et une nouvelle caractérisation du faisceau incident, une seconde série de mesures a été menée sur les 4 échantillons à la longueur d'onde de 532 nm. Les courbes expérimentales et les simulations correspondantes sont représentées à la figure 5.9.

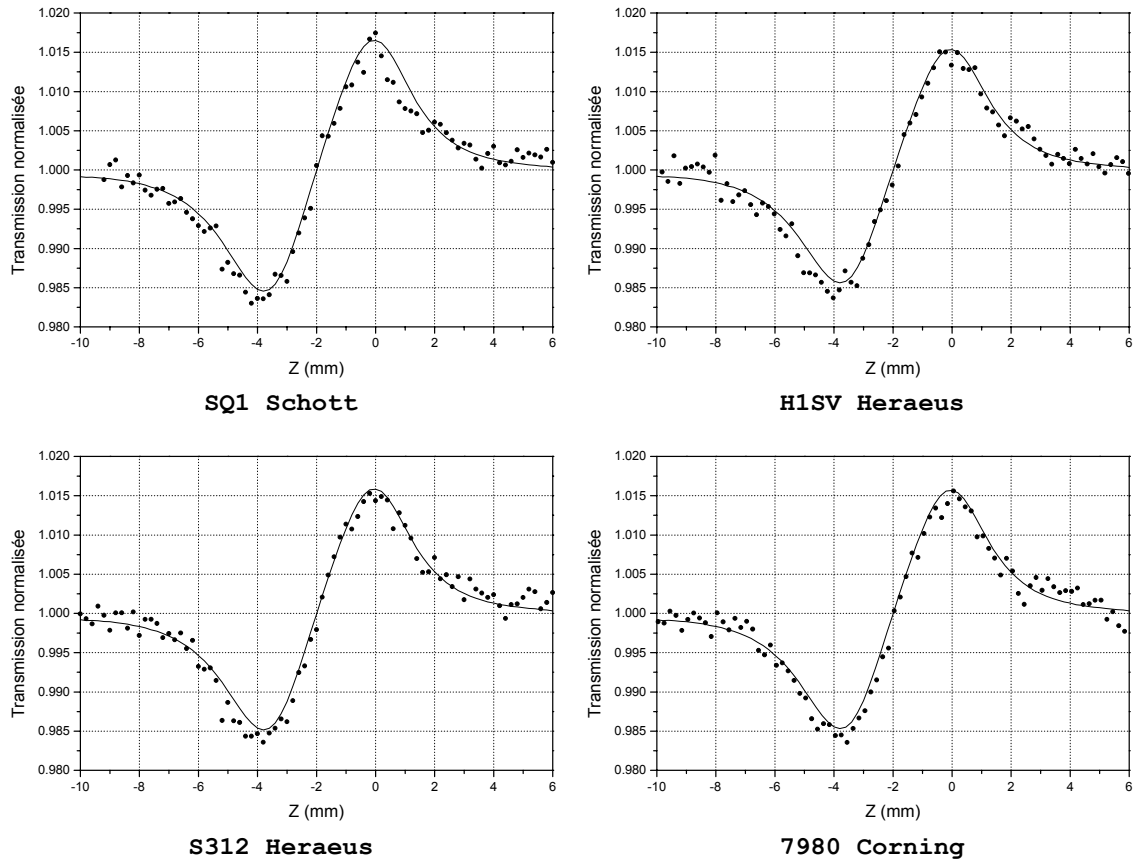


FIG. 5.9 – Courbes de transmission normalisée obtenues avec 4 échantillons de silice à 532 nm (points : expérimental, lignes continues : simulation)

De la même manière, l'accord entre les simulations et les mesures est très bon, bien que pour cette longueur d'onde, les fluctuations du faisceau soient un peu plus importantes, du fait de la conversion de fréquence.

5.4.4 Estimation de l'indice de réfraction et commentaires

Pour chaque échantillon, plusieurs mesures à différentes positions ont été réalisées, afin de vérifier l'uniformité de l'indice de réfraction non-linéaire. Aucune différence significative n'a pu être constatée. L'indice de réfraction non-linéaire a été évalué à partir des mesures précédentes. Le résumé de cette évaluation apparaît sur la figure 5.10. Les barres d'erreur représentent l'incertitude de 12% à 1064 nm et de 16% à 532 nm, qui ont été évaluées au paragraphe 5.3.3.

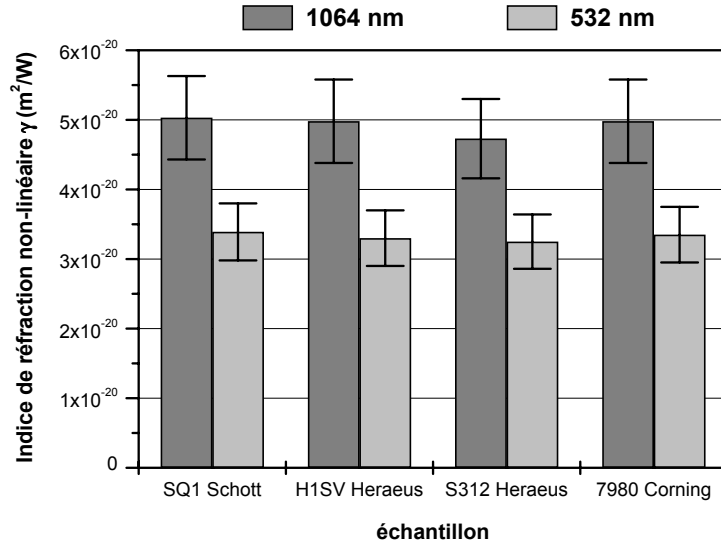


FIG. 5.10 – Estimation de l'indice de réfraction non-linéaire γ dans 4 échantillons de silice différents à 1064 nm et 532 nm

D'après ces résultats, la sensibilité de la méthode et les dérives ne permettent pas d'observer des différences significatives de l'indice de réfraction non-linéaire d'un échantillon à l'autre. Dans ces conditions, l'indice de réfraction non-linéaire moyen vaut environ $(4,9 \pm 0,6) \times 10^{-20} m^2/W$ à 1064 nm et $(3,4 \pm 0,4) \times 10^{-20} m^2/W$ à 532 nm.

L'indice de réfraction non-linéaire mesuré à 1064 nm est particulièrement élevé par rapport à la valeur habituellement trouvée, de 3 à $4 \times 10^{-20} m^2/W$, mesuré à l'aide de méthode de mélange à quatre ondes [31, 6]. Or, il faut rappeler que cette dernière valeur ne tient pas compte des mécanismes de temps de réponse supérieur à quelques centaines de picosecondes, comme les effets thermiques et l'électrostriction.

Dans notre étude, tous les mécanismes peuvent être excités et nous avons vu, notamment, que l'électrostriction peut apporter une contribution de $1,2 \times 10^{-20} m^2/W$. La valeur trouvée à 1064 nm est donc plausible et indiquerait alors une forte contribution induite par des mécanismes de temps de réponse plus lents. Par ailleurs, cette valeur a été obtenue dans des conditions de fluence particulièrement élevée, proche du seuil d'endommagement du matériau. Nous avons vu au chapitre 1 que l'absorption d'un échantillon de silice peu absorbante⁴ n'induit pas de variation d'indice de réfraction significative. En revanche, un mécanisme d'absorption non-linéaire peut engendrer une absorption supplémentaire. Lors des mesures dans la silice, aucune absorption non-linéaire n'a été observée. Dans notre configuration expérimentale, ceci signifie que les éventuels mécanismes d'absorption non-linéaire dans la silice ne provoquent pas de variation d'absorption $\Delta\alpha$ supérieure à environ $0,003 cm^{-1}$. Or, pour une telle absorption supplémentaire, et vu la forte fluence dans le matériau, la variation d'indice de réfraction thermo-induite peut alors atteindre l'ordre de grandeur de la variation d'indice induite par les autres mécanismes⁵.

La valeur trouvée à 532 nm est, quant à elle, plus proche de l'indice de réfraction non-linéaire déterminé par des méthodes de mélange à quatre ondes. Il faut noter que, pour cette longueur d'onde, la durée d'impulsion est plus faible, du fait de la conversion dans le second harmonique. Par ailleurs, les fluctuations temporelles du faisceau sont également plus rapides et d'amplitude plus élevée, puisque le phénomène de conversion est un mécanisme non-linéaire quadratique. Dans ces conditions, il est possible que les mécanismes de temps de réponse de l'ordre de la nanoseconde, comme l'électrostriction, soient beaucoup moins sollicités. Enfin, toujours à cause de la conversion de fréquence, l'énergie des impulsions a été fortement réduite et la fluence utilisée est alors plus éloignée du seuil d'endommagement. Les effets thermiques ont ici très peu de chance d'induire de variation significative de l'indice de réfraction.

⁴de coefficient d'absorption linéique typiquement inférieur à $10^{-4} cm^{-1}$

⁵Pour s'en convaincre, il suffit de se reporter aux simulations du chapitre 4 pour évaluer l'effet de l'absorption non-linéaire sur les courbes de transmission normalisée, puis, de se reporter à l'évaluation de la variation d'indice induite par les effets thermiques au chapitre 1.

5.5 Etude dans la silice avec une durée d'impulsion de 7 ns

5.5.1 Conditions de l'étude

Afin de valider les résultats obtenus précédemment, une seconde série de mesures a été menée à l'aide du laser Nd :YAG Q-Switch délivrant des impulsions d'environ 7 ns de durée effective totale à $1/e$. Cette étude a concerné cette fois-ci plusieurs échantillons de silice d'épaisseurs différentes (11 mm , $9,2\text{ mm}$ et $6,5\text{ mm}$), pour vérifier également que le modèle permet de prendre correctement en compte l'influence de l'épaisseur de l'échantillon.

Le laser utilisé ici fournit des impulsions de durée plus courte. Il sera donc possible, sans perte de sensibilité, d'atteindre des fluences moins élevées, plus éloignées du seuil d'endommagement laser.

Tout comme dans l'étude précédente, le faisceau incident a été caractérisé spatialement et temporellement avant et après l'étude. L'énergie moyenne sur 500 impulsions a été mesurée avant et après chaque série de 5 balayages et corrigée de la réflexion sur la face avant de l'échantillon.

5.5.2 Résultats à 1ω

L'énergie moyenne n'a pas varié de plus de $\pm 2\%$ durant l'ensemble de l'étude. Les conditions expérimentales moyennes de l'étude sont résumées dans le tableau 5.2.

Longueur d'onde	$\lambda\text{ [nm]}$	1064
Energie	$E\text{ [mJ]}$	0,436
Surface effective	$S_e\text{ [cm}^2\text{]}$	$4,54 \times 10^{-6}$
Fluence sur l'axe optique	$F\text{ [J/cm}^2\text{]}$	96
Durée d'impulsion effective	$\tau'_e\text{ [ns]}$	3,7
Intensité effective sur l'axe optique	$I_e\text{ [GW/cm}^2\text{]}$	10,4

TAB. 5.2 – Conditions expérimentales moyennes de l'étude dans la silice à 1ω

Dans ces conditions, deux mesures ont été effectuées sur l'échantillon de 11 mm et sont présentées sur les figures 5.11 et 5.12.

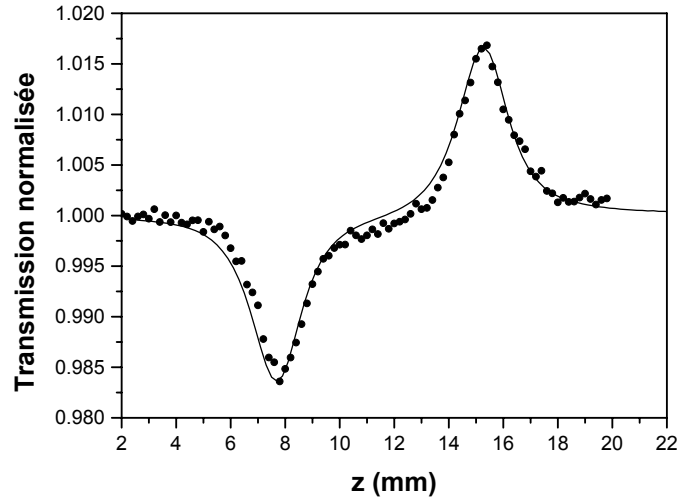


FIG. 5.11 – Courbe de transmission normalisée obtenue sur l'échantillon de 11 mm à 1ω (points) et simulation (trait continu). L'indice de réfraction non-linéaire obtenu vaut : $\gamma \approx 4,0 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$

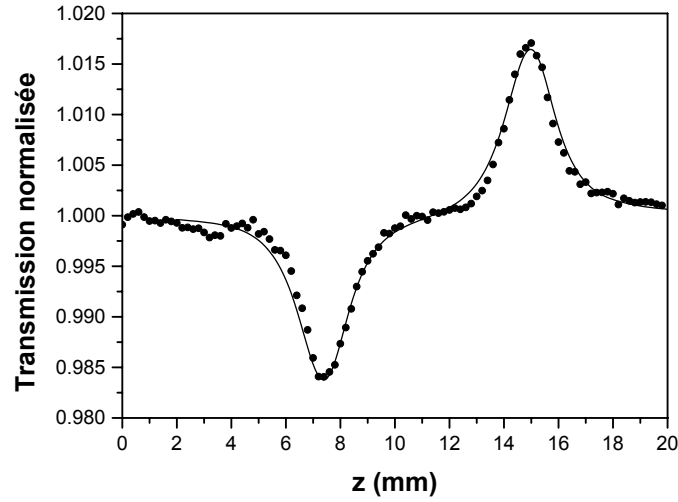


FIG. 5.12 – Courbe de transmission normalisée obtenue sur l'échantillon de 11 mm à 1ω (points) et simulation (trait continu). L'indice de réfraction non-linéaire obtenu vaut : $\gamma \approx 3,9 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$

Une bonne répétabilité est constatée à partir de ces deux mesures, puisque l'indice de réfraction non-linéaire obtenu est le même à 4% près.

D'autres mesures ont été effectuées dans les mêmes conditions sur des échantillons d'épaisseur 6,2 mm et 9,2 mm. Les résultats sont présentés respectivement sur les figures 5.13 et 5.14.

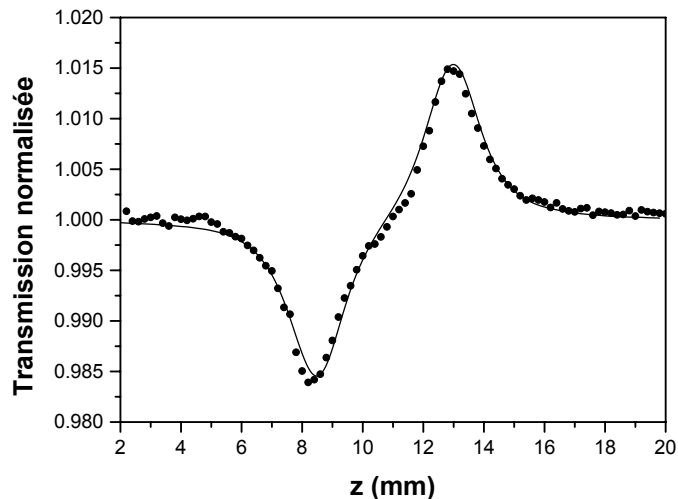


FIG. 5.13 – Courbe de transmission normalisée obtenue sur l'échantillon de 6,5 mm à 1ω (points) et simulation (trait continu). L'indice de réfraction non-linéaire obtenu vaut : $\gamma \approx 3,8 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$

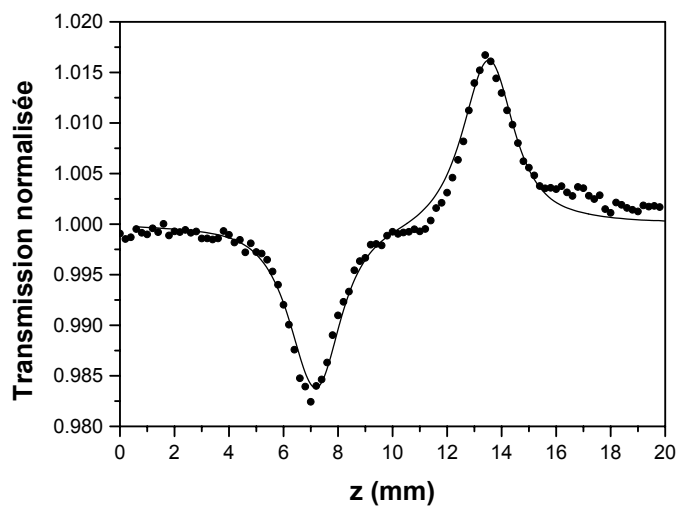


FIG. 5.14 – Courbe de transmission normalisée obtenue sur l'échantillon de 9,2 mm à 1ω (points) et simulation (trait continu). L'indice de réfraction non-linéaire obtenu vaut : $\gamma \approx 3,9 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$

Outre le fait que l'on constate encore sur ces études de très faibles variations de la transmission normalisée sur les pieds de la courbe, les points de mesure sont en parfait accord avec les simulations, et ce, avec plusieurs épaisseurs d'échantillon. Ceci tend à valider une fois de plus notre montage expérimental et nos simulations numériques.

A l'issue de ces quatre mesures, réalisées à 1ω avec une durée d'impulsion d'environ 7 ns, un indice de réfraction non-linéaire moyen de $3,9 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, avec un écart de $\pm 0,15 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$, soit environ $\pm 4\%$. Comme l'avait montré l'étude de linéarité en énergie, ceci tend à montrer à nouveau que la sensibilité de notre montage en relatif est d'environ 5%.

5.5.3 Résultats à 2ω

Des mesures ont également été réalisées à 2ω sur deux des échantillons précédents. La mise en forme du faisceau à 2ω a été beaucoup plus délicate avec ce laser. Les résultats obtenus ici sont très certainement entachés d'une erreur supérieure à 15% car, durant les acquisitions, la forme du faisceau a été particulièrement instable et la simulation numérique du faisceau incident n'a pas pu être correctement ajustée à la caractérisation expérimentale du faisceau. Les résultats sont représentés sur les figures 5.15 et 5.16.

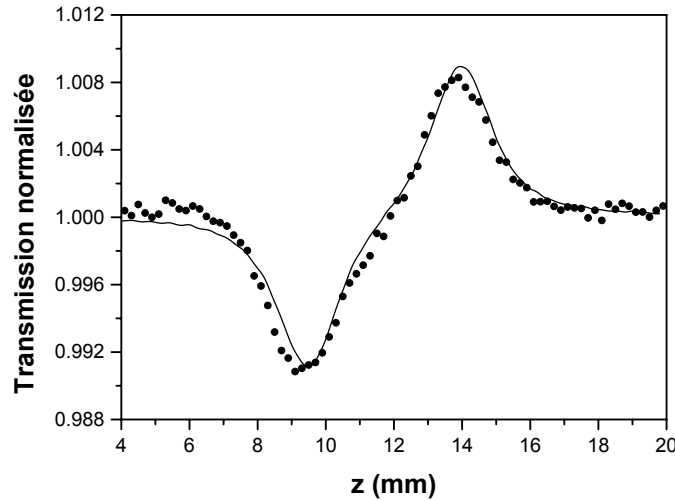


FIG. 5.15 – Courbe de transmission normalisée obtenue sur l'échantillon de 6,5 mm à 2ω (points) et simulation (trait continu). L'indice de réfraction non-linéaire obtenu vaut : $\gamma \approx 2,2 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$

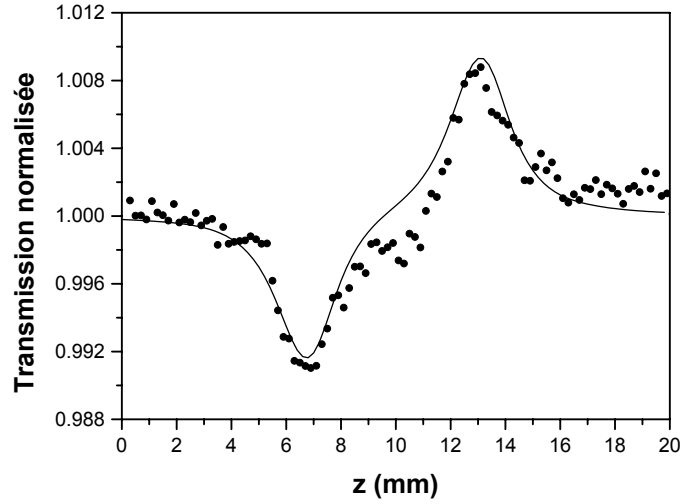


FIG. 5.16 – Courbe de transmission normalisée obtenue sur l'échantillon de 9,2 mm à 2ω (points) et simulation (trait continu). L'indice de réfraction non-linéaire obtenu vaut : $\gamma \approx 3,0 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$

La relative divergence entre les courbes expérimentales et les courbes simulées témoignent des instabilités du faisceau durant cette étude à 2ω . En effet, on a constaté, lors des simulations numériques du faisceau incident, une nette inadéquation entre les simulations et les mesures, indiquant que le faisceau incident n'était pas correctement mis en forme lors de ces mesures. Ainsi, deux valeurs assez différentes de l'indice de réfraction non-linéaire ont été trouvées (plus de 30% de différence), témoignant également de la difficulté d'une mesure précise dans ces conditions. Une nette amélioration de la métrologie devra être faite pour poursuivre des études dans la silice à cette longueur d'onde. Ceci est possible en utilisant un laser dont le dépointé est plus faible et dont l'énergie convertie est plus stable, ce qui rendra le filtrage spatial et le réglage de la corrélation des voies de mesure plus aisés.

5.5.4 Conclusion des études dans la silice

A l'issue de ces différentes études menées dans la silice à 1ω et 2ω et avec deux lasers différents, de durée d'impulsion d'environ 7 ns et 20 ns, nous avons pu remarquer, tout d'abord, une bonne uniformité de l'indice de réfraction sur l'échantillon. Par ailleurs, les différents échantillons de silice testés ont un indice de réfraction non-linéaire similaire à quelques pourcents près. En outre, le très bon accord entre expérience et simulation et

la bonne répétabilité des mesures obtenues avec des échantillons d'épaisseurs différentes montre que notre banc de mesure est stable et que notre modèle est bien adapté à notre montage expérimental.

Par ailleurs, une dépendance très nette de l'indice de réfraction non-linéaire en fonction de la durée d'impulsion et de la longueur d'onde a été constatée. Les résultats obtenus pour les quatres points de fonctionnement utilisés sont résumés sur la figure 5.17.

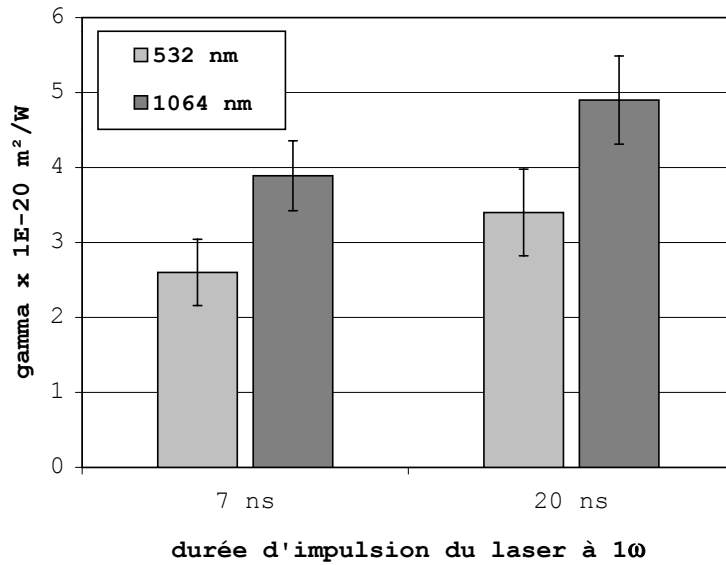


FIG. 5.17 – *Indice de réfraction non-linéaire de la silice mesuré avec notre montage, pour deux durées d'impulsions et deux longueurs d'onde différentes*

Comme on peut le constater, l'indice de réfraction mesuré dans ces conditions augmente avec la durée d'impulsion. En effet, nous avons déjà évoqué plusieurs fois le fait que les phénomènes de temps de réponse de l'ordre de la nanoseconde (électrostriction et effets thermiques) sont théoriquement non négligeables dans la silice en régime nanoseconde. Or si la durée d'impulsion augmente, ces phénomènes ont de plus en plus le temps de se développer et induisent une contribution plus importante à la variation d'indice de réfraction globale. Les mesures effectuées avec les deux durées d'impulsion nanoseconde différentes tendent à prouver que les mécanismes d'électrostriction et les effets thermiques apportent une contribution importante à la variation d'indice de réfraction photo-induite.

Par ailleurs, le fait que l'indice de réfraction non-linéaire soit plus faible à 532 nm

par rapport à celui mesuré à 1064 nm ne provient pas uniquement d'une dispersion en longueur d'onde de l'indice de réfraction non-linéaire. En effet, la conversion de fréquence nous oblige à travailler avec des profils temporels qui sont théoriquement le carré des profils temporels du faisceau initial (à 1ω). Ainsi, la durée des impulsions qui ont permis de faire les mesures à 2ω sont réduites et les fluctuations du profil temporel sont amplifiées. Ainsi, l'électrostriction et les effets thermiques sont moins sollicités avec les impulsions converties dans le second harmonique.

Ainsi, nous avons démontré par l'expérience que l'électrostriction et les effets thermiques ont une influence notable sur l'indice de réfraction non-linéaire. La prédiction de l'indice de réfraction est donc particulièrement difficile en régime nanoseconde, puisque celui-ci va dépendre fortement de la durée d'impulsion, et, dans le cas d'un laser multi-mode longitudinal, de l'amplitude des fluctuations du profil temporel.

Notons que l'observation d'une telle dépendance avec la durée d'impulsion a été rendue possible grâce à notre parfaite maîtrise de la métrologie de la méthode de Z-scan. Les affirmations et les observations faites dans cette étude n'ont, en effet, de sens que dans la mesure où l'on peut avoir parfaitement confiance en les valeurs mesurées et les simulations numériques effectuées. Ceci est une des originalités de notre approche de la méthode de Z-scan : contrôler parfaitement la métrologie de cette méthode pour pouvoir l'utiliser ensuite avec une démarche prospective qui ait du sens.

5.6 Etude dans le BK7 avec une durée d'impulsion de 7 ns

5.6.1 Résultats à 1ω

Un échantillon de verre silicate de type BK7 a également été testé à l'aide de notre montage expérimental. Le résultat de cette mesure est représenté à la figure [5.18](#).

Dans ce cas, un indice de réfraction non-linéaire d'environ $5,1 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ a été trouvé. Cette valeur est également supérieure à la valeur estimée avec l'équation empirique de Boling, Glass et Owyong, c'est à dire environ $3,2 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$ en prenant un indice de réfraction linéaire égal à 1,52 et un nombre d'Abbe égal à 64 [\[36\]](#). L'indice de

réfraction est ici plus élevé pour la même raison que pour la silice, c'est à dire que l'électrostriction et les effets thermiques peuvent apporter une contribution non négligeable dans le régime nanoseconde. Dans le cas de la silice, nous avons montré dans le premier chapitre qu'il y avait peu de chance que les effets thermiques jouent un rôle important si le coefficient d'absorption linéique est inférieur à environ 10^{-3} cm^{-1} . En revanche, le BK7 est, en général, plus absorbant. Pour s'en convaincre, le lecteur pourra se reporter à l'annexe E et constater qu'un verre silicate du même type que le BK7, par exemple un verre S-BAL de chez Ohara Corporation, présente un coefficient d'absorption linéique d'environ $3 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ à $1 \mu\text{m}$.

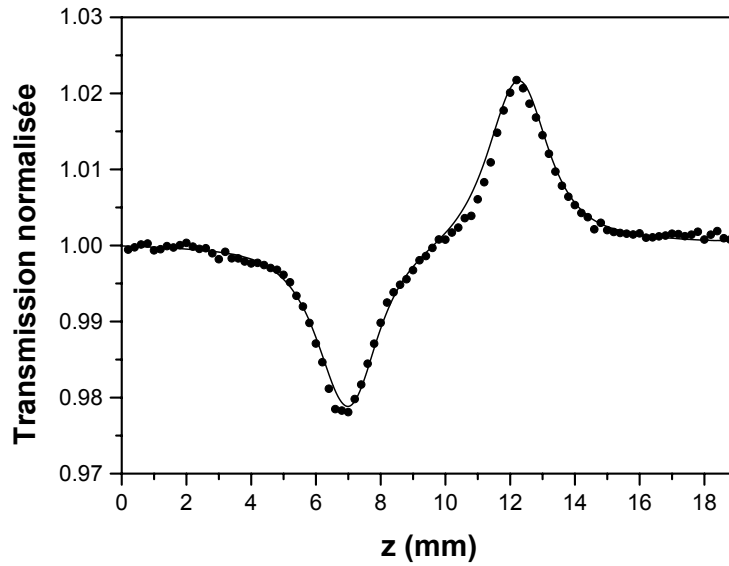


FIG. 5.18 – Courbe de transmission normalisée obtenue sur un échantillon de BK7 de 8 mm à 1ω (points) et simulation (trait continu). L'indice de réfraction non-linéaire obtenu vaut : $\gamma \approx 5,1 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$

5.6.2 Résultats à 2ω

Une mesure a également été effectuée dans l'échantillon de BK7 à 2ω . Le résultat est représenté à la figure 5.19. Contrairement à ce qui a été présenté jusqu'à maintenant, les 5 balayages consécutifs ont été représentés. Tout d'abord, la dissymétrie des courbes de transmission normalisée indique la présence d'absorption non-linéaire. Par ailleurs, la modification des courbes balayage après balayage indique que le matériau a été modifié par l'insolation.

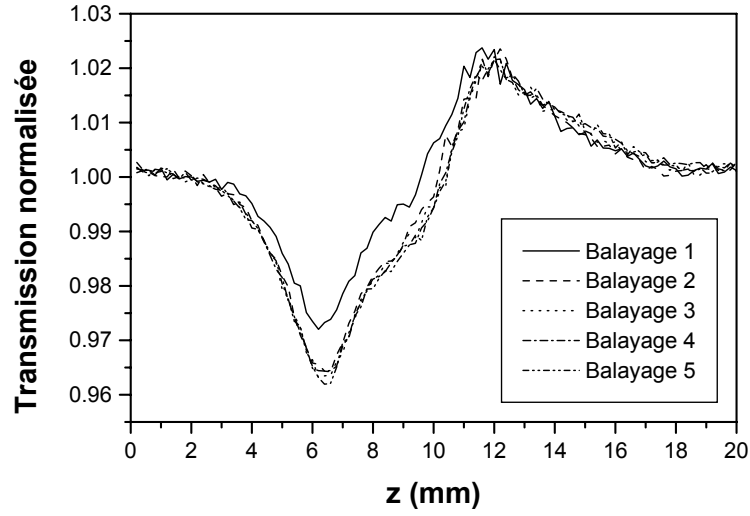


FIG. 5.19 – Courbes de transmission normalisée obtenues consécutivement sur un échantillon de BK7 à 2ω

Pour étudier plus finement ce phénomène, l'échantillon de BK7 a été testé dans une configuration de Z-scan "ouvert", c'est à dire une configuration dans laquelle toute l'énergie du faisceau est mesurée, afin de ne s'intéresser qu'à l'effet de l'absorption non-linéaire (voir chapitre 2). La figure 5.20 représente les courbes d'énergie normalisée à la sortie de l'échantillon, obtenues consécutivement. Comme on peut le voir, l'absorption non-linéaire semble augmenter balayage après balayage, puis sature. Ce type de comportement peut s'expliquer par l'apparition progressive d'absorption linéaire durable non-uniformément répartie dans l'échantillon. Ce genre de phénomène, déjà observé dans le BK7 et d'autres verres silicates [129], est connu sous le nom de solarisation [36] et est induit dans ce cas par l'absorption à deux photons à 532 nm . On parle alors de centres colorés photo-induits par absorption à deux photons. Ce type de phénomène a déjà été évoqué au paragraphe 2.4.3 du chapitre 2. Ce phénomène a pour effet d'engendrer une absorption linéaire durable dans le matériau dans les zones qui ont été irradiées. Lorsque le matériau est irradié par des tirs répétés issus d'un laser impulsif nanoseconde, le niveau d'absorption évolue en fonction du nombre de tirs, donc de la dose d'énergie qui a été reçue par le matériau. Une saturation de l'absorption est observée au bout d'un certain nombre de tirs et ce niveau de saturation dépend de la densité d'énergie reçue à chaque tir [129].

Nous avons positionné l'échantillon pour être au minimum des courbes d'énergie nor-

malisée représentées à la figure 5.20, afin d'étudier l'évolution de cette absorption induite par solarisation en fonction du nombre de tirs. L'évolution du minimum est représenté à la figure 5.21. A titre de comparaison, le nombre de tirs nécessaire à un seul balayage de Z-scan a été représenté. Cette mesure a été réalisée avec des tirs de fluence moyenne égale à 36 J/cm^2 sur l'axe optique et au point de focalisation. Ces résultats sont en assez bon accord avec ceux obtenus par White et ses collaborateurs [129] en ce qui concerne la vitesse d'évolution en fonction du nombre de tir.

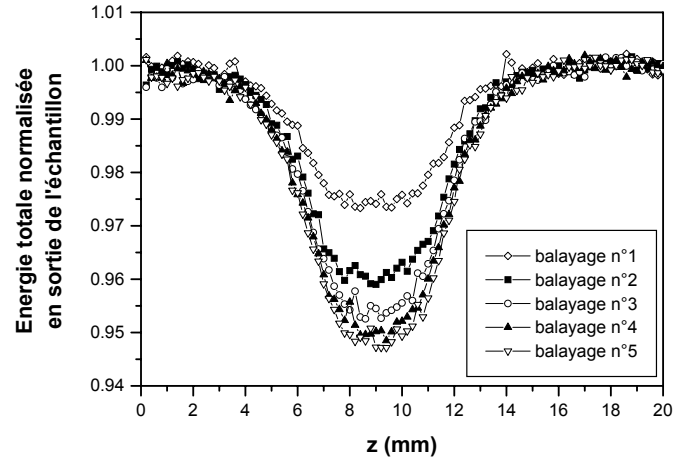


FIG. 5.20 – Courbes d'énergie totale normalisée à la sortie de l'échantillon obtenues consécutivement sur l'échantillon de BK7 à 2ω

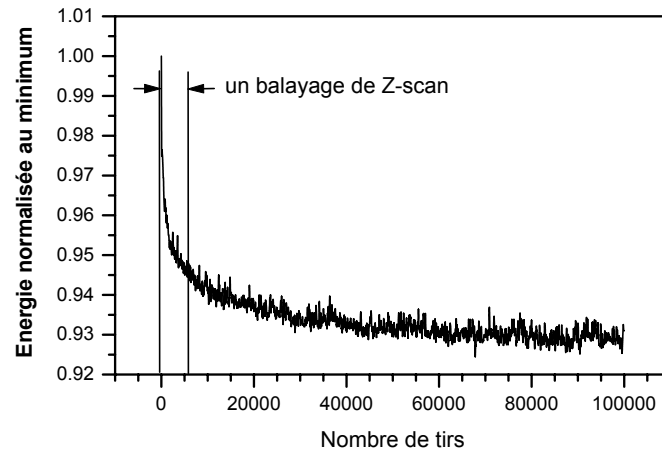


FIG. 5.21 – Evolution de l'énergie au minimum des courbes d'énergie normalisée en fonction du nombre de tirs

Dans ce cas de figure, il est difficile de faire la différence entre l'effet de l'absorption à deux photons et la solarisation sur le comportement des courbes d'énergie normalisée. En

effet, lors des balayages, le phénomène de solarisation induit une absorption linéaire sur toute l'épaisseur de l'échantillon, engendrant ainsi une sorte de "canal" absorbant dont l'absorption varie radialement. De plus, le fait que ce phénomène sature au bout d'un certain nombre de tirs implique que ce profil radial d'absorption induite ne suit pas le profil du faisceau mais possédera en toute logique un profil se rapprochant plutôt d'un profil radial rectangulaire dont le diamètre sera environ égal au diamètre du faisceau au point de focalisation. Pour évaluer grossièrement l'amplitude du phénomène, nous avons tout de même réalisé une simulation numérique à partir d'une mesure obtenue après plusieurs balayages pour que la saturation du phénomène soit atteinte (figure 5.22). Nous avons considéré, dans les simulations, que tout se passait comme si la courbe d'énergie normalisée obtenue était uniquement due à un phénomène d'absorption non-linéaire proportionnel à l'intensité.

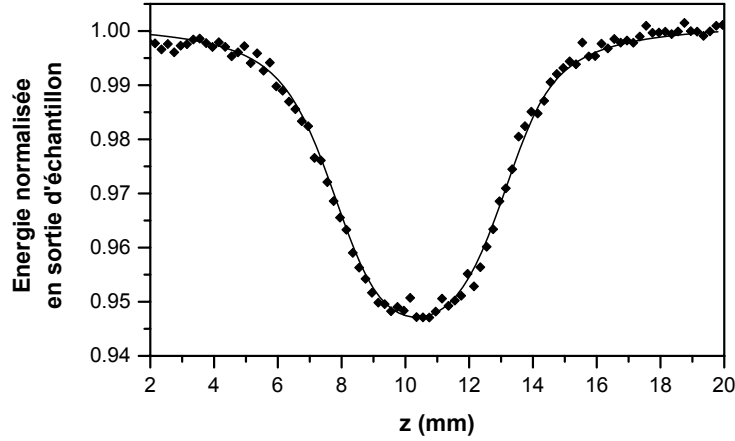


FIG. 5.22 – Courbe d'énergie normalisée en sortie de l'échantillon obtenue après saturation du phénomène de solarisation avec une intensité effective de $4,2 \text{ GW/cm}^2$. Expérience (points) et simulation (trait continu).

Dans ces conditions, la simulation numérique indique que la variation d'absorption $\Delta\alpha$ est d'environ $0,1 \text{ cm}^{-1}$. En divisant cette valeur par l'intensité sur l'axe optique et au point de focalisation, ceci correspond à un coefficient d'absorption non-linéaire de $0,03 \text{ cm/GW}$. Ce résultat est en accord avec la valeur trouvée dans l'étude de White [129], c'est à dire environ $0,07 \pm 0,04 \text{ cm/GW}$. En outre, cette étude a montré que le coefficient d'absorption à deux photons est relativement faible, estimé égal à $0,003 \text{ cm/GW}$ à 532 nm dans le BK7. Ceci tend à indiquer que l'effet observé sur les courbes d'énergie totale normalisée

est finalement dû principalement au phénomène de solarisation, c'est à dire à une répartition d'absorption linéaire durable et non-uniforme, et non à une absorption photo-induite réversible.

Grâce à la très grande versatilité de notre algorithme de simulation, nous avons tenté une nouvelle simulation, cette fois-ci plus réaliste, en négligeant le phénomène d'absorption non-linéaire et en considérant que les précédents balayages effectués dans l'échantillon ont induit un "canal" absorbant, c'est à dire une absorption linéaire non-uniforme dont la répartition spatiale suit le profil radial d'intensité du faisceau au point de focalisation (voir figure 5.23). Le résultat de la simulation est représenté à la figure 5.24. Cette nouvelle simulation est également en très bon accord avec les résultats expérimentaux. En fait, les deux simulations se superposent parfaitement, mais la concordance avec les résultats expérimentaux a été obtenue ici avec un coefficient d'absorption linéaire maximum au centre du "canal" égal à $0,08 \text{ cm}^{-1}$. Ceci correspond à une variation d'absorption $\Delta\alpha$ dans l'échantillon inférieure de 25% à la valeur trouvée dans le cas d'une absorption non-linéaire (c'est à dire $0,1 \text{ cm}^{-1}$).

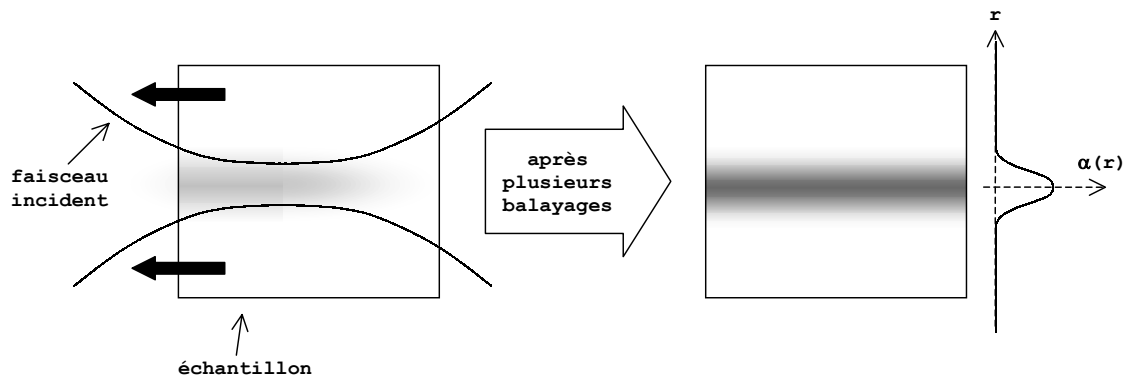


FIG. 5.23 – Illustration de la création d'un "canal" absorbant par solarisation dans l'échantillon

A l'aide des courbes représentées sur les figures 5.22 et 5.24, nous constatons donc expérimentalement et numériquement, qu'une absorption linéaire non-uniforme induite par solarisation mène au même comportement des courbes d'énergie normalisée qu'une absorption non-linéaire.

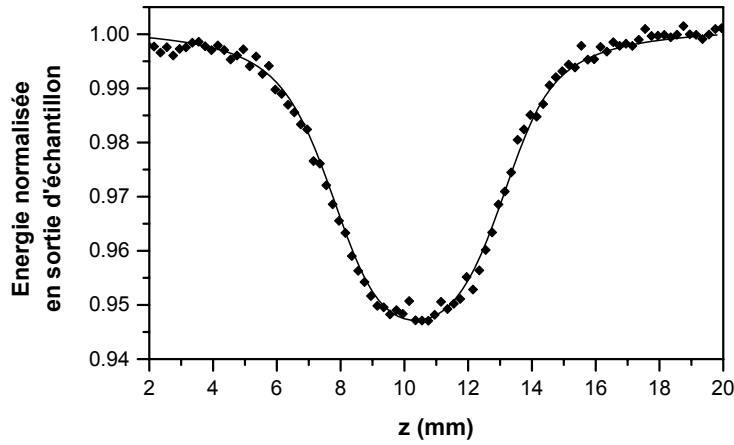


FIG. 5.24 – Courbe d'énergie normalisée en sortie de l'échantillon obtenue après saturation du phénomène de solarisation avec une intensité effective de $4,2 \text{ GW/cm}^2$. Expérience (points) et simulation en supposant qu'un "canal" absorbant irréversible a été induit dans l'échantillon (trait continu).

Dans le but d'étudier plus précisément ce phénomène de solarisation⁶ serait de corrélérer nos mesures avec des mesures d'endommagement ou de microscopie photothermique. L'Institut Fresnel est en effet équipé de deux bancs de métrologie maintenant très bien maîtrisés : un banc d'endommagement laser [17] et un banc de cartographie d'absorption linéaire par microscopie photothermique [12]. Depuis peu, un nouveau banc de mesure a d'ailleurs été développé [13] qui permet des études parallèles d'endommagement et d'absorption, permettant de suivre, in-situ, l'évolution de l'absorption induite par des inclusions sub-microniques d'or dans des couches de silice lorsque celles-ci sont irradiées par des impulsions laser nanosecondes.

Pour faire des études de Z-scan plus poussées de la solarisation et améliorer notre compréhension de ce phénomène, une étude d'absorption pourrait être envisagée afin de connaître l'évolution et la répartition spatiale de l'absorption induite par solarisation, ceci pour pouvoir l'intégrer dans nos simulations.

⁶qui, rappelons-le, peut être considéré comme un endommagement, ou pré-endommagement du matériau

5.7 Conclusion

Dans un premier temps, l'analyse précise de la transmission normalisée intégrée a permis de déterminer le lien entre les courbes de transmission normalisée expérimentales et les courbes de transmission normalisée simulées. Cette analyse a permis également d'étudier l'influence des fluctuations du faisceau laser sur le comportement des courbes de transmission normalisée. En outre, cette analyse a permis de définir le paramètre temporel pertinent à mesurer, ce qui nous a amené à définir une durée d'impulsion effective pour l'interaction non-linéaire. Enfin, nous avons remarqué qu'il est crucial d'utiliser la méthode de Z-scan dans sa zone de linéarité en Δn , afin d'éviter d'introduire des erreurs pouvant atteindre 30% et qui sont dues, une fois de plus, à des approximations abusives qu'il n'est pas toujours facile de remarquer à première vue. Par ailleurs, une estimation des erreurs sur l'étalonnage et de la résolution des appareils de mesures nous indique que l'indice de réfraction non-linéaire est déterminé avec une erreur de $\pm 12\%$ à 1064 nm et $\pm 16\%$ à 532 nm .

Dans un second temps, nous avons présenté les résultats des études que nous avons menées à 1064 nm et à 532 nm dans la silice avec deux durées d'impulsions nanosecondes différentes et dans le BK7. Grâce à la stabilité et la sensibilité de notre montage et aux caractérisations précises des paramètres du faisceau, nous avons pu réaliser des mesures fiables, qui concordent parfaitement avec les simulations numériques effectuées parallèlement. Ceci a été vérifié également pour plusieurs énergies différentes et plusieurs épaisseurs d'échantillons, ce qui montre la linéarité de notre montage et tend à valider le bon accord avec nos simulations numériques. Une bonne répétabilité des mesures a également été constatée, indiquant que l'erreur en relatif est meilleure que 5%.

Dans ces conditions, l'indice de réfraction non-linéaire des échantillons de silice testés est supérieur à l'indice de réfraction non-linéaire trouvé dans le régime femtoseconde. En effet, comme on pouvait s'y attendre, la contribution du mécanisme d'électrostriction n'est pas négligeable. L'étude pour deux durées d'impulsion différentes confirme cette influence des mécanismes de temps de réponse plus lents (de l'ordre de la nanoseconde) puisque l'indice de réfraction non-linéaire mesuré est plus faible lorsque la durée d'impulsion est également plus faible. Par ailleurs, on peut noter qu'aucune variation significative d'indice de réfraction non-linéaire n'a pu être constatée d'un échantillon de silice à l'autre.

Dans le cas du BK7, une valeur élevée de l'indice de réfraction non-linéaire a également été trouvée, confirmant l'influence de l'électrostriction et, éventuellement, des effets thermiques. En outre, à 532 nm , nous avons constaté la solarisation habituelle dans ce type de matériau, induite par un mécanisme d'absorption à deux photons. L'ordre de grandeur de ce phénomène a été estimé, mais une analyse plus poussée est nécessaire pour étudier ce phénomène avec plus de précision. L'étude de cette induction de centres colorés est intéressante dans le cadre de l'étude des mécanismes de l'endommagement laser et il faudrait coupler notre analyse de ce phénomène par la méthode de Z-scan avec des mesures d'absorption et des mesures statistiques du seuil d'endommagement, comme il est possible d'en réaliser à l'Institut Fresnel.

En conclusion générale, nous avons montré la grande sensibilité de notre montage à l'aide de mesures dans un matériau aussi peu non-linéaire que la silice. Ceci permet d'utiliser la méthode de Z-scan dans sa zone de linéarité, c'est à dire, loin de la puissance critique. Ceci ouvre la voie également à des études dans une large gamme de matériaux, comme par exemple des matériaux fragiles ou fortement absorbants, sans être obligé de travailler dans des conditions d'intensité et de fluence susceptibles de les endommager. Dans ce cas, il faut noter que notre algorithme tient compte de l'absorption linéaire. En outre, l'utilisation couplée d'une mesure sensible comme la notre et de notre algorithme de propagation non-linéaire peut permettre l'optimisation de systèmes ou de chaînes laser qui doivent supporter des puissances proches de la puissance critique. En reprenant l'annexe B, on peut en effet constater que lorsqu'on passe de 0,95 à 1,05 fois la puissance critique, l'intensité maximum dans l'échantillon peut être multipliée par 10, au moins. La nécessité d'une mesure précise de l'indice de réfraction non-linéaire prend ici tout son sens.

Conclusion

Ce travail de thèse a été axé autour de l'étude des variations d'indice de réfraction photo-induites dans le régime nanoseconde, ceci dans le cadre de l'étude de l'autofocalisation et de son influence sur l'endommagement laser. Dans cette optique, un nouveau banc de mesure de faibles indices de réfraction non-linéaires a été développé à l'Institut Fresnel.

Pour mettre en place ce banc de mesure, il a tout d'abord fallu s'intéresser au formalisme de l'optique non-linéaire et aux origines potentielles des variations de l'indice de réfraction photo-induites dans le régime nanoseconde. Nous avons vu que l'électrostriction ne peut pas être négligée dans le cas d'un solide comme la silice, possédant un faible indice de réfraction non-linéaire. Les effets thermiques peuvent également induire une contribution non négligeable si l'absorption de l'échantillon est suffisamment élevée (à partir de 10^{-3} cm^{-1} , typiquement). Après une étude des différentes approches de mesure de l'indice de réfraction non-linéaire, nous avons pu constater que la méthode de mesure la plus adaptée à notre cadre d'étude est la méthode de Z-scan. Cette méthode à un seul faisceau est basée sur l'étude des déformations du faisceau incident induites par le phénomène d'autofocalisation.

Une étude bibliographique poussée de la méthode de Z-scan a permis de nous forger une bonne connaissance de son principe et de ses limites, afin de la mettre en place au laboratoire et d'étudier la faisabilité d'une mesure d'indice de réfraction non-linéaire aussi faible que celui de la silice, c'est à dire 2 à 3 ordres de grandeurs au-dessous de ceux mesurés habituellement par cette méthode. Par ailleurs, dans le régime nanoseconde, l'intensité du faisceau qu'il est possible d'atteindre est rapidement limitée par l'endommagement du matériau et par conséquent, il est impossible de se placer dans des conditions expérimentales qui permettent d'obtenir un signal de Z-scan élevé. En outre, il est de toute façon préférable de ne pas induire de variation d'indice trop élevée pour éviter de travailler

proche de la puissance critique et dans un régime de fonctionnement dans lequel la variation de transmission normalisée n'est pas linéairement liée à la variation d'indice dans l'échantillon. En effet, l'utilisation d'une puissance trop proche de la puissance critique complique les simulations numériques, l'interprétation des résultats et peut mener, par une augmentation locale du champ, à l'excitation d'effets non-linéaires d'ordre supérieur, voire également à l'endommagement du matériau.

Dans ces conditions, nous avons montré la faisabilité d'une telle mesure [130] en mettant en place un montage expérimental particulièrement stable et optimisé pour répondre à plusieurs contraintes de notre cadre d'étude : un indice non-linéaire particulièrement faible, des impulsions nanosecondes, un régime d'utilisation proche du seuil d'endommagement et une taille de faisceau réduite pour s'éloigner de la puissance critique. Cette mise en place a nécessité une bonne connaissance des caractéristiques spatio-temporelles du faisceau incident et un soin tout particulier concernant le choix de la configuration expérimentale et l'alignement, afin d'améliorer d'un rapport proche de 10 la sensibilité de la méthode par rapport à l'étude initiale de Sheik-Bahae. Ceci nous permet d'avoir une détectivité estimée à $\lambda/500$ et une sensibilité de $\lambda/3000$ sur la détermination de la variation de chemin optique dans l'échantillon.

Parallèlement, un grand soin a été apporté à la maîtrise de la métrologie de l'indice de réfraction non-linéaire par cette méthode [131], en caractérisant précisément et systématiquement les paramètres spatio-temporels réels du faisceau incident. Ceci nous a également encouragés à développer un algorithme de simulation général, permettant de simuler le signal obtenu dans une configuration de Z-scan arbitraire avec, notamment, un faisceau quelconque et une épaisseur d'échantillon quelconque. A l'aide de cet algorithme, nous avons pu réduire les risques de mauvaise interprétation des mesures expérimentales qui, rapidement, peuvent mener insidieusement à des erreurs supérieures à plusieurs dizaines de pour-cent.

Ainsi, grâce à la grande sensibilité et à la parfaite maîtrise de notre banc de mesure, ainsi qu'à l'utilisation de simulations numériques fiables, nous avons pu étudier l'indice de réfraction non-linéaire de la silice en régime nanoseconde. Plusieurs mesures ont été réalisées sur plusieurs échantillons de silice de natures différentes, de fabricants différents, et d'épaisseurs différentes, pour deux longueurs d'ondes (1064 nm et 532 nm) et

pour deux durées d'impulsion différentes (7 ns et 20 ns) [132, 133] avec une erreur estimée à 12% à 1064 nm et 16% à 532 nm sur la détermination de l'indice de réfraction non-linéaire. Toutes ces mesures concordent et indiquent effectivement une contribution non-négligeable de l'électrostriction et, potentiellement des effets thermiques. Par ailleurs, aucune non-uniformité et aucune différence entre les différents échantillons n'a réellement pu être constatée. Les études dans un verre borosilicate de BK7 ont quant à elles permis d'arriver au même type de conclusion. En revanche, dans le BK7 et à 532 nm , un autre phénomène vient perturber la mesure : il s'agit de la solarisation, induite par un mécanisme d'absorption à deux photons. Une étude plus poussée de ce phénomène mérite d'être menée et éventuellement d'être complétée par de mesures d'absorption et d'endommagement laser qui peuvent être réalisées au laboratoire.

Il est important de remarquer à ce stade que c'est notre parfaite maîtrise de la métrologie qui nous permet de tirer des conclusions de nos mesures. En effet, nous avons vu à travers les différents chapitres de ce document que des approximations abusives sur le type de faisceau incident peut mener à des erreurs de 40% et qu'une utilisation hors de la plage de linéarité de la méthode peut amener à des erreurs de 30%. Sans cette maîtrise de la métrologie, nous n'aurions donc pas pu constater la présence de l'électrostriction avec certitude. C'est là un des principaux intérêts de l'étude poussée de cette méthode qui, maintenant, offre de nombreuses possibilités d'études quantitatives des phénomènes non-linéaires. Ainsi, l'étude de matériaux fragiles ou très absorbants peut être envisagée sans que l'on soit obligé de travailler dans des conditions d'intensité et de fluence risquant de les endommager. En outre, la mesure précise de l'indice de réfraction non-linéaire, couplée à l'utilisation de notre algorithme peut permettre l'optimisation de systèmes laser devant supporter des puissances proches de la puissance critique.

A l'aide de ce banc de mesure, des études similaires dans le troisième harmonique méritent d'être tentées. Par ailleurs, des études plus systématiques peuvent également être envisagées dans les verres optiques et éventuellement comparées à des études d'endommagement pour mieux quantifier l'effet de l'autofocalisation sur l'endommagement laser. Notre algorithme de simulation et notre montage expérimental permettent, en outre, des études de l'absorption non-linéaire et de la solarisation, qui pourraient être comparées à des études d'absorption et d'endommagement laser, réalisables à l'Institut Fresnel. D'autre part, des études comparées en nanoseconde et en femtoseconde peuvent per-

mettre d'estimer la contribution de mécanismes thermiques ou induits par électrostriction. Ceci peut permettre d'appliquer la métrologie de l'indice de réfraction non-linéaire à la détermination de caractéristiques thermo-optiques ou opto-mécaniques de matériaux transparents. En outre, la grande versatilité de notre algorithme de simulation ouvre de nombreuses voies d'investigation. En effet, cet algorithme est facilement adaptable pour l'étude de matériaux au comportement non-linéaire singulier, dont l'indice de réfraction ne varie pas forcément linéairement en fonction de l'intensité. D'une manière générale, la méthode de Z-scan possède de nombreuses possibilités d'adaptation, dont certaines ont déjà été étudiées (Z-scan résolu en temps, Z-scan à deux faisceaux) et notre algorithme de simulation est très général et permet de décrire finement l'autofocalisation dans l'échantillon, ce qui offre un grand nombre de possibilités d'études dans une large gamme de matériaux.

Annexe A

Conversion entre les systèmes MKS et CGS

Bien que le système d'unité le plus couramment utilisé aujourd'hui soit le système MKS, de nombreux ouvrages et publications, utilisent encore le système d'unité CGS pour la définition de la susceptibilité non-linéaire et de l'indice de réfraction non-linéaire. Ces grandeurs portent alors la mention $[esu]$, c'est à dire : "electromagnetic system of unity".

Afin de pouvoir passer d'un système à l'autre, il est utile de rappeler quelques relations de conversion.

Dans ce travail, la convention adoptée pour le développement en série de la polarisation électrique est la suivante :

$$P = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} E + \frac{3}{4} \times \frac{\chi^{(3)}}{\epsilon_0} |E|^2 E + \dots \right) \quad (\text{A.1})$$

où le champ s'exprime en V/m .

En revanche, dans le système CGS, la convention adoptée pour le développement en série de la polarisation électrique est la suivante :

$$P = \chi^{(1)} E + \frac{3}{4} \times \chi^{(3)} |E|^2 E + \dots \quad (\text{A.2})$$

où le champ s'exprime en *statvolt/cm*.

L'indice de réfraction est défini par les relations :

$$\begin{cases} n^2 = 1 + 4\pi\chi & \text{en CGS} \\ n^2 = 1 + \chi & \text{en MKS} \end{cases} \quad (\text{A.3})$$

Par ailleurs, l'indice de réfraction **non-linéaire** est, quant à lui, défini à l'aide des relations suivantes, communes aux deux systèmes d'unité :

$$n = n_0 + \frac{n_2}{2} |E|^2 \quad \text{et} \quad n = n_0 + \gamma I \quad (\text{A.4})$$

A l'aide de ces conventions, on dresse le tableau A.1, résumant les relations de passage entre susceptibilité et indices non-linéaires pour les deux systèmes d'unité.

CGS	MKS
$n_2[esu] = \frac{3\pi}{n_0} \chi^{(3)}[esu]$	$n_2[m^2/V^2] = \frac{3}{4n_0\epsilon_0} \chi^{(3)}[C \cdot m/V^3]$
$\gamma[esu] = \frac{4\pi}{n_0 c} n_2[esu]$	$\gamma[m^2/W] = \frac{120\pi}{n_0} n_2[m^2/V^2]$

TAB. A.1 – Relations entre susceptibilités et indices de réfraction non-linéaires pour les systèmes d'unité CGS et MKS

Enfin, notons que la plupart du temps, $\chi^{(3)}$ et n_2 sont exprimés en système CGS, tandis qu'il est beaucoup plus parlant et pratique de manipuler l'indice de réfraction non-linéaire γ en m^2/W . Sachant que :

$$I[esu] = I \left[\frac{erg}{cm^2 \times s} \right] = 10^3 \times I \left[\frac{W}{m^2} \right]$$

On trouve la relation suivante :

$$\gamma[m^2/W] = \frac{40\pi}{n_0 c} n_2[esu] \quad (\text{A.5})$$

Annexe B

Puissance critique d'autofocalisation

B.1 Estimation dans le cas de l'approximation paraxiale

Lorsqu'un faisceau traverse un milieu non-linéaire dont l'indice de réfraction croît avec l'intensité du faisceau, le gradient d'indice introduit tend à focaliser le faisceau. Si l'amplitude du phénomène est assez élevée, cette autofocalisation peut compenser la diffraction du faisceau. Dans ce cas précis, l'autofocalisation peut mener à un auto-guidage du faisceau qui a été étudié pour la première fois dans les années soixante par Chiao et al. [115, 134]. A partir d'une simple interprétation d'optique géométrique du phénomène dans le cas d'un faisceau de profil radial rectangulaire¹, on montre aisément que la diffraction d'un tel faisceau est compensée par l'effet non-linéaire lorsque la puissance totale du faisceau atteint la valeur critique suivante [115] :

$$P_c = \frac{\pi (1,22\lambda)^2}{8 n_0 \gamma} \quad (\text{B.1})$$

Cette approximation a pu être vérifiée par une analyse de l'équation de Helmholtz scalaire paraxiale non-linéaire², Chiao et al. ont trouvé une solution simple décrivant la propagation d'un faisceau auto-guidé dans le cas d'un problème à une dimension transverse et d'un profil spatial invariable le long de l'axe optique. Dans le cas plus réaliste d'un faisceau de symétrie cylindrique, Chiao et al. ont trouvé numériquement une expression

¹ analogie avec le guidage d'un fibre optique à saut d'indice

² appelée encore équation de Schrödinger non-linéaire ou équation parabolique non-linéaire

plus précise de la puissance critique, dépendant de la taille du faisceau :

$$P_c = 5,763 \times \frac{\lambda^2}{\pi^2 n_0 \gamma} \times \frac{n_{eff}}{n_0} \quad \text{avec} \quad n_{eff} = \left(n_0^2 + \frac{\Gamma^2}{k_0^2} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{B.2})$$

où $1/\Gamma$ est une dimension représentative de la taille du faisceau auto-guidé.

Notons que cette expression ne dépend que faiblement de la taille du faisceau et dans le cas d'un faisceau de taille supérieure à la longueur d'onde ($\Gamma \times \lambda \gg 2\pi$), l'expression B.2 de la puissance critique tend vers l'expression B.1.

Kelley [117] s'est intéressé au cas d'une autofocalisation du faisceau et non plus simplement d'un auto-guidage. Reprenant l'équation de Helmholtz scalaire paraxiale non-linéaire, Kelley a établi une expression de la distance d'autofocalisation, lieu où l'intensité du faisceau devient particulièrement élevée et il en a déduit une autre expression de la puissance critique d'autofocalisation, qui a été vérifiée numériquement dans le cas d'un faisceau gaussien :

$$P_c = \frac{\pi (1,22\lambda)^2}{32 n_0 \gamma} \quad (\text{B.3})$$

Cette expression prévoit une puissance critique 4 fois plus faible qu'avec la définition de Chiao. Kelley a également établi une loi d'évolution empirique simple, mais valable uniquement dans le cas où la puissance est supérieure à la puissance critique.

A l'aide d'une analyse de l'autofocalisation basée sur une approximation de rayons paraxiaux, Wagner et al. [118] ont encore précisé la description du phénomène d'autofocalisation, l'expression de la distance d'autofocalisation et ont trouvé numériquement une expression de la puissance critique concordant avec les résultats de Kelley puisqu'elle prévoit une puissance critique égale à 0,273 fois la puissance critique de Chiao.

A partir d'une étude numérique de l'équation de Helmholtz scalaire paraxiale non-linéaire, Dawes et Marburger [119] ont pu vérifier les résultats de Kelley et Wagner en montrant en particulier que lorsque la puissance du faisceau est comprise entre la puissance critique de Chiao et celle de Wagner, le faisceau subit une "faible" autofocalisation, n'entraînant pas de variation d'intensité supérieure à 2 fois l'intensité initiale sur l'axe optique. Au delà de la puissance critique définie comme Wagner, l'intensité le long de l'axe optique diverge.

Plus récemment, et toujours à partir de l'approximation paraxiale, Fibich [120] a évalué la puissance critique d'autofocalisation pour différents profils de faisceau incident et a introduit une limite inférieure pour la puissance critique. Dans le cas du profil soliton de Townes [115], solution de l'équation de Helmholtz non-paraxiale, non-linéaire, Fibich définit la limite inférieure de la puissance critique. Pour ce type de profil, la puissance critique est définie comme la puissance nécessaire à la propagation d'un soliton spatial auto-guidé. Pour d'autres profil spatiaux, Fibich explique que le faisceau subit une étape de "réorganisation" spatiale vers un faisceau du type soliton de Townes, durant laquelle une fraction de sa puissance est perdue et rejetée loin de l'axe optique. Ainsi, pour un faisceau de profil quelconque, Fibich constate une puissance critique un peu plus élevée que la puissance critique définie précédemment, constituant ainsi une limite supérieure de puissance critique. Dans le cas d'un faisceau gaussien, dont le profil spatial est proche de celui du soliton spatial de Townes, les limites inférieure et supérieure de la puissance critique ne diffère que d'environ 5%. La puissance critique minimale utilisée par Fibich vaut :

$$P_c = N_c \times \frac{\lambda^2}{4\pi n_0 \gamma} \quad \text{avec} \quad N_c \approx 1,86225 \quad (\text{B.4})$$

En résumé, retenons que ces différents travaux basés sur l'approximation paraxiale proposent une puissance critique d'autofocalisation pouvant s'exprimer sous la forme suivante :

$$P_c = C \times \frac{\lambda^2}{n_0 \gamma} \quad (\text{B.5})$$

La constante C vaut alors suivant les études :

Chiao	$C \approx 0,58449$
Kelley	$C \approx 0,14612$
Wagner	$C \approx 0,15957$
Fibich (limite inf.)	$C \approx 0,14819$
Fibich (limite sup., cas gaussien)	$C \approx 0,15915$

A partir de cette puissance critique, les modèles précédents prévoient une autofocalisation du faisceau induisant une augmentation rapide de l'intensité sur l'axe optique et ce sur une distance typique de l'ordre de la distance de diffraction du faisceau³.

Notons par ailleurs que l'approximation paraxiale est abusive dans la région où le faisceau commence à se focaliser fortement puisqu'il atteint une taille extrêmement réduite

³dans le cas d'un faisceau gaussien, cette distance est assimilable à la longueur de Rayleigh

sur une très faible distance. Depuis ces travaux, les études de l'autofocalisation ont surtout tenté d'abandonner l'hypothèse de paraxialité, ainsi que l'hypothèse scalaire qui devient également fausse dans la zone où le faisceau converge fortement [107, 124, 126, 127, 121, 128, 122, 125, 123].

B.2 Etude de l'autofocalisation autour de la puissance critique avec un modèle non-paraxial

A l'aide de notre algorithme de propagation basé sur la méthode de Feit et Fleck, nous allons étudier l'autofocalisation autour de la puissance critique définie dans le paragraphe précédent. Dans la suite, nous choisissons d'utiliser la valeur de la puissance critique évaluée par Wagner.

Nous étudions tout d'abord le cas d'un faisceau gaussien de rayon à $1/e^2$ égal à $15\ \mu m$, de longueur d'onde $1064\ nm$ et focalisé sur la face avant de l'échantillon non-linéaire. Nous avons calculé numériquement l'évolution du maximum d'intensité sur l'axe optique du faisceau durant la propagation dans le milieu non-linéaire pour une puissance totale du faisceau proche de la puissance critique (voir figure B.1).

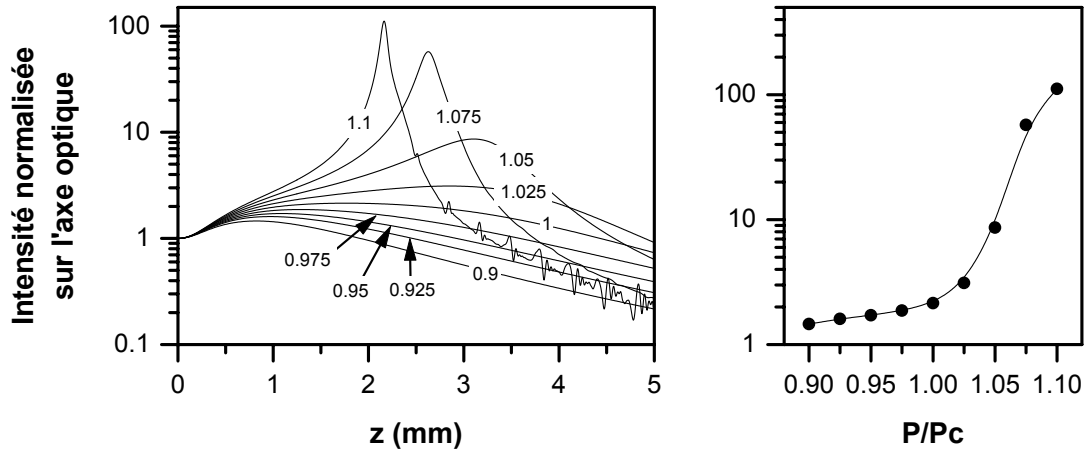


FIG. B.1 – Cas d'un faisceau gaussien : Evolution de l'intensité sur l'axe optique en fonction de la distance parcourue dans le matériau non-linéaire (à gauche) et intensité maximum sur l'axe optique en fonction du rapport de la puissance du faisceau sur la puissance critique (à droite)

Comme ceci a déjà été observé par Dawes et Marburger, pour des puissances légèrement inférieures à la puissance critique, le faisceau subit une faible autofocalisation, puis diverge. La valeur de l'intensité sur l'axe optique au foyer d'autofocalisation varie lentement avec la puissance initiale du faisceau et reste inférieure à trois fois l'intensité initiale lorsque $P \leq P_c$. En revanche, au delà de la puissance critique, l'intensité au foyer d'autofocalisation augmente alors beaucoup plus rapidement et atteint des valeurs de l'ordre de plusieurs dizaines de fois l'intensité initiale pour une augmentation de seulement 10% par rapport à la puissance critique. D'après ces résultats, il semble que la valeur de la puissance critique déterminée à l'aide des modèles paraxiaux estime assez bien la valeur de la puissance nécessaire à provoquer une autofocalisation dite "catastrophique".

Dans le cas d'un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée", il est intéressant de faire les mêmes simulations numériques. La figure B.2 représente les résultats de ces simulations pour un faisceau focalisé sur la face avant de l'échantillon. Le faisceau a été choisi afin d'avoir une surface effective identique au faisceau gaussien utilisé précédemment.

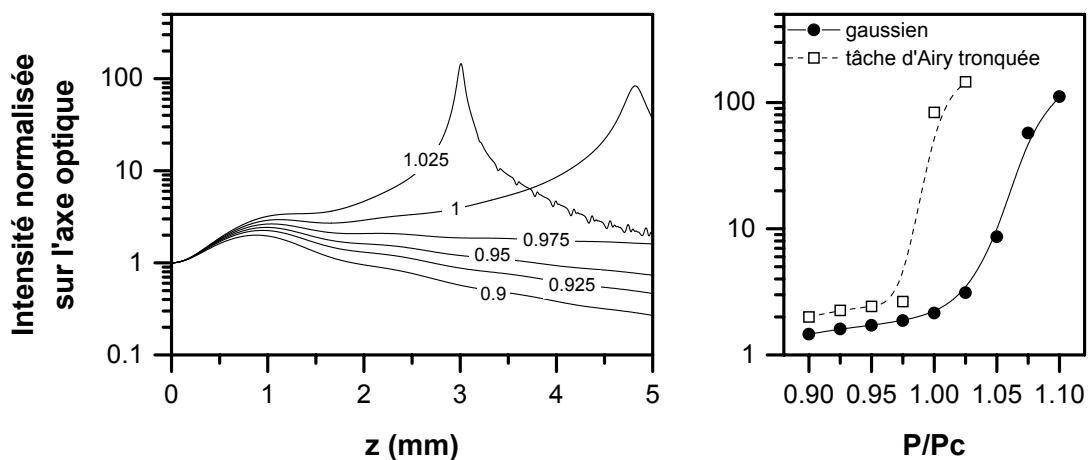


FIG. B.2 – Cas d'un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée" : Evolution de l'intensité sur l'axe optique en fonction de la distance parcourue dans le matériau non-linéaire (à gauche) et intensité maximum sur l'axe optique en fonction du rapport de la puissance du faisceau sur la puissance critique (à droite)

Dans le cas d'un tel faisceau, on remarque clairement que la puissance critique est légèrement inférieure à la puissance critique estimée dans le cas gaussien (environ 5%

plus faible). Par ailleurs, l'autofocalisation devient beaucoup plus rapidement "catastrophique".

En conclusion, il est à noter que la détermination de la puissance critique d'autofocalisation reste un problème délicat. Toutefois, la plupart des études, concordent à quelques pourcents près sur la valeur de la puissance critique. Les simulations réalisées à partir d'un modèle non-paraxial semblent converger également vers une valeur proche de celle obtenue avec les différentes analyses et calculs numériques paraxiaux. Par ailleurs, il a été constaté que, dans le cas d'un faisceau non gaussien, comme par exemple, un faisceau de type "tâche d'Airy tronquée", la puissance critique nécessaire à une autofocalisation dite "catastrophique" est plus faible de quelques pourcents. A ce sujet, il faut garder à l'esprit que dans le cas d'un faisceau multimode transverse (mais aussi dans le cas d'un faisceau multimode longitudinal), le comportement non-linéaire des matériaux diélectriques peut devenir très complexe et difficile à interpréter, surtout pour des phénomènes aussi sensibles que l'autofocalisation. L'influence d'un faisceau multimode ou fluctuant sur les comportements non-linéaires a déjà été étudié en détail par Bloembergen dans le cas de l'émission Raman stimulée [135] ou encore de la génération de second harmonique [136].

Annexe C

Principe de fonctionnement des lasers Nd :YAG à Q-switch

Il est intéressant de connaître un peu mieux le principe de fonctionnement des lasers à Q-switch et évoquer quelques comportements caractéristiques afin d'utiliser ces lasers et d'interpréter nos caractérisations de faisceau dans de bonnes conditions.

C.1 Introduction des pertes dans la cavité

Il existe plusieurs méthodes pour introduire artificiellement des pertes dans la cavité. Couramment, et dans le cas des lasers utilisés dans cette étude, un composant électro-optique est utilisé, permettant de faire tourner la polarisation. A l'aide d'un ou de plusieurs autres éléments polarisants, l'électro-optique permet d'introduire de très fortes pertes dans la cavité avec un temps de réponse particulièrement faible (typiquement inférieur à 10 ns).

C.2 Pompage

Pour pomper le milieu amplificateur, des lampes flash sont utilisées afin d'émettre de la lumière uniquement pendant une période de quelques centaines de microsecondes. En effet, la durée de vie de l'atome dans l'état excité supérieur vaut environ $230\text{ }\mu\text{s}$ dans le cas du YAG dopé néodyme. Or, à énergie de pompage fixée, l'efficacité de pompage décroît fortement lorsque sa durée dépasse la durée de vie de l'atome dans l'état excité supérieur. Pour conserver une bonne efficacité de pompage, il est donc nécessaire de pomper le milieu

amplificateur sur une très courte période, ce qui rend indispensable l'utilisation de lampe flash et d'un circuit électronique adapté.

C.3 Durée d'impulsion

La durée d'impulsion va dépendre de plusieurs paramètres. Pour des conditions de pompage équivalentes, l'impulsion laser mettra d'autant plus de temps pour se former que la cavité laser est grande. Par ailleurs, la puissance de pompage va avoir un effet déterminant sur la durée des impulsions.

En effet, le comportement d'un tel laser est fortement dépendant du coefficient d'inversion initial, défini comme le rapport entre le niveau d'inversion atteint juste avant le basculement brutal des pertes et le niveau d'inversion seuil, représentant le niveau d'inversion nécessaire pour que le gain compense exactement les pertes dans la cavité. Si ce coefficient d'inversion initial est élevé, l'impulsion se forme très brutalement, la durée du phénomène est courte et la puissance crête est importante. Or, comme nous l'avons vu précédemment, l'inversion sera d'autant plus forte que la puissance de pompage a été importante.

Ainsi, une baisse de la puissance de l'alimentation des lampes flash va augmenter la taille des impulsions, ce que nous allons constater plus tard. Il est ainsi toujours recommandé d'utiliser les lasers à Q-switch à leur puissance maximum.

C.4 Modes longitudinaux et battements

Dans les milieux amplificateurs solides comme le cristal de YAG dopé néodyme, la raie d'émission est très large car elle est considérablement élargie par des vibrations désordonnées de la structure cristalline (élargissement par phonons). Dans le modèle classique d'un dipole oscillant, le spectre de la raie d'émission est décrit par une lorentzienne de largeur à mi hauteur égale à $\Delta\omega_a$ et centrée sur ω_a . Dans le cas du YAG dopé néodyme, l'élargissement par phonons est très largement supérieur aux autres contributions à température ambiante et provoque un élargissement de l'ordre de $\Delta\omega_a/2\pi \approx 120\text{ GHz}$ [59], ce qui correspond à une largeur de raie en longueur d'onde de $0,45\text{ nm}$ (centré autour de $\lambda_a = 1064\text{ nm}$).

Par ailleurs, pour une cavité laser de longueur $L = 50\text{ cm}$, la transmission de la cavité présente des pics distants de $\lambda_a^2/2L \approx 0,0011\text{ nm}$. Seuls les modes pour lesquels le gain sera supérieur aux pertes dans la cavité pourront osciller, ce qui a tendance à réduire le spectre d'un rapport 10 par rapport à la largeur de raie d'émission initiale. Ainsi, le spectre d'un laser Nd :YAG possède approximativement l'allure représentée à la figure C.1.

Un grand nombre de modes longitudinaux coexistent donc dans la cavité d'un laser Nd :YAG (ici, une quarantaine à mi-hauteur), susceptibles d'interférer les uns avec les autres et de moduler l'impulsion de sortie. Dans le cas idéal de modes longitudinaux en phase et de même intensité, la figure C.2 représente l'allure théorique de la puissance de sortie d'un laser ayant une cavité de 50 cm de long, modulé par une gaussienne de largeur 10 ns à $1/e^2$.

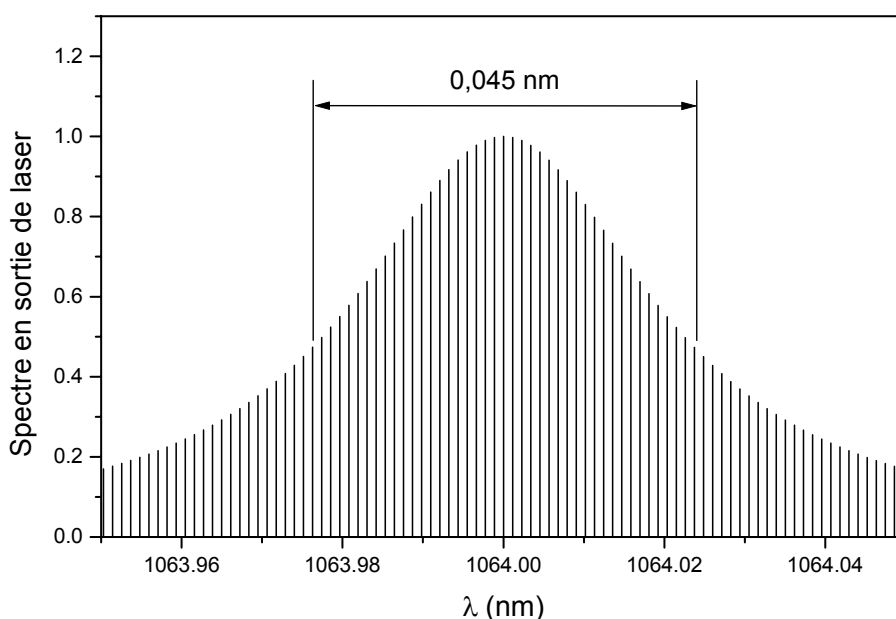


FIG. C.1 – *Allure typique du spectre d'un laser Nd :YAG*

La grande quantité de modes disponibles dans les lasers à milieu amplificateur solide permet de générer des trains d'impulsions très courtes. La mise en phase de ces modes est à l'origine du principe de génération d'impulsions sub-nanosecondes (mode-locking). En réalité tous ces modes sont déphasés, ce qui brouille les interférences observées à la figure C.2.

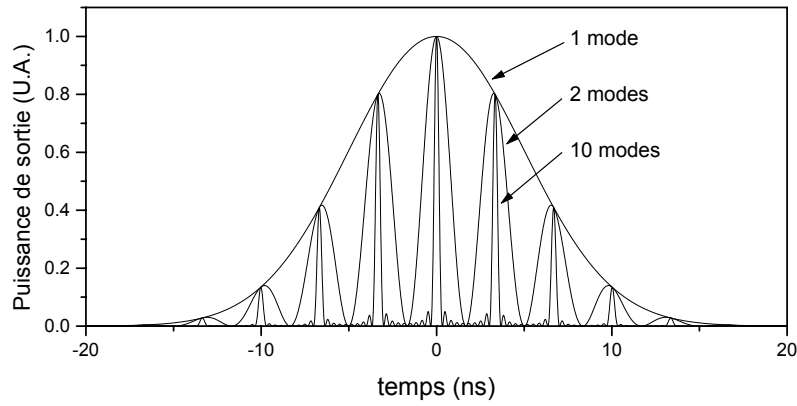


FIG. C.2 – *Puissance instantanée théorique en sortie d'un laser de longueur de cavité égale à 50 cm dans l'approximation d'interférences à N ondes monochromatiques en phase*

Toutes ces considérations sont approximatives et la résolution de tels problèmes n'est pas simple. Par exemple, en présence de plusieurs modes transverses, des résonances additionnelles sont à prendre en compte dans la cavité [114], pouvant ajouter autant de modes longitudinaux supplémentaires qu'il y a de modes transverses. Retenons simplement que les impulsions nanosecondes issues de lasers Nd :YAG peuvent comporter des variations à des fréquences très élevées qui ne sont pas toujours visibles par les instruments de mesures. Ceci a peu d'importance la plupart du temps mais pour l'étude quantitative précise de phénomènes non-linéaires rapides, il est indispensable d'avoir conscience de ces phénomènes.

Annexe D

Calculs explicites du modèle de propagation de Feit et Fleck en symétrie cylindrique

Pour décrire l'évolution d'un faisceau focalisé quelconque en milieu amorphe non-linéaire, nous avons choisi d'utiliser le schéma de propagation de Feit et Fleck [107]. Pour réduire le temps de calcul et la taille de stockage nécessaire, nous avons également fait l'hypothèse d'un faisceau à symétrie cylindrique, c'est à dire que le champ est indépendant de la coordonnée cylindrique θ . Dans ces conditions, nous supposons tout d'abord que l'amplitude complexe du champ électrique vérifie l'équation de Helmholtz non-linéaire en coordonnées cylindriques :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial E}{\partial r} + \frac{\partial^2 E}{\partial z^2} + \frac{\omega^2}{c^2} n^2(\omega, r, z) E = 0 \quad (\text{D.1})$$

Adoptant la même notation que Feit et Fleck, les opérateurs suivant sont alors définis :

$$P = \frac{\partial}{\partial z} \quad (\text{D.2})$$

$$Q = \left(\nabla_T^2 + \frac{\omega^2}{c^2} n^2 \right)^{\frac{1}{2}} \quad (\text{D.3})$$

où ici, le laplacien transverse ∇_T^2 représente $\partial^2/\partial r^2 + \frac{1}{r} \partial/\partial r$.

L'équation D.1 peut alors se réécrire sous la forme :

$$(P^2 + Q^2) E = 0 \quad (\text{D.4})$$

Cette forme est équivalente également à :

$$[(P + iQ)(P - iQ) + i(PQ - QP)] E = 0 \quad (\text{D.5})$$

Or, pour de faibles variations d'indice suivant z , c'est une bonne approximation de considérer que $PQ = QP$. Dans ces conditions, l'équation précédente est satisfaite par des ondes indépendantes se propageant vers les z positifs ou négatifs et devient :

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \pm iQE \quad (\text{D.6})$$

Intégrant cette équation pour l'onde se propageant vers les z positifs et sur une petite distance Δz , le champ à la position Δz peut s'exprimer en fonction du champ à la position $z = 0$ de la manière suivante :

$$E(r, \Delta z) = \exp \left(i \int_0^{\Delta z} Q dz \right) E(r, 0) \quad (\text{D.7})$$

Pour une variation d'indice lente dans la direction z ou pour un incrément Δz suffisamment petit, l'équation précédente vaut approximativement

$$E(r, \Delta z) = \exp(i\Delta z Q) E(r, 0) \quad (\text{D.8})$$

Par ailleurs dans leurs premiers travaux sur la propagation d'onde dans des fibres à gradient d'indice [137], Feit et Fleck ont montré que l'opérateur Q peut s'exprimer sous la forme suivante :

$$Q = \left(\nabla_T^2 + \frac{\omega^2}{c^2} n^2 \right)^{\frac{1}{2}} = \frac{\nabla_T^2}{\left(\nabla_T^2 + \frac{\omega^2}{c^2} n^2 \right)^{\frac{1}{2}} + \frac{\omega}{c} n} + \frac{\omega}{c} n + \frac{\frac{\omega}{c} [n, Q]}{Q + \frac{\omega}{c} n} \quad (\text{D.9})$$

où $[n, Q] = nQ - Qn$.

Feit et Fleck ont également montré dans ce même travail que pour de lentes variations transverses de l'indice n , $[n, Q] \approx 0$ et l'indice n peut être remplacé par l'indice linéaire n_0 dans le premier terme de la relation D.9, ce qui donne finalement :

$$Q = \left(\nabla_T^2 + \frac{\omega^2}{c^2} n^2 \right)^{\frac{1}{2}} \sim \frac{\nabla_T^2}{(\nabla_T^2 + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} + k + k \left[\left(\frac{n}{n_0} \right) - 1 \right] \quad \text{avec } k = n_0 \omega / c \quad (\text{D.10})$$

Finalement, exprimant l'amplitude complexe du champ électrique sous la forme $E(r, z) = U(r, z) \exp(ikz)$, les relations D.8 et D.10 nous donne :

$$U(r, \Delta z) = \exp \left[i\Delta z \left(\frac{\nabla_T^2}{(\nabla_T^2 + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} + \chi \right) \right] U(r, 0) \quad \text{avec } \chi = k[(n/n_0) - 1] \quad (\text{D.11})$$

Au second ordre en Δz , cette expression peut être éclatée en la forme symétrique suivante :

$$U(r, \Delta z) = \exp \left[i \frac{\Delta z}{2} \left(\frac{\nabla_T^2}{(\nabla_T^2 + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} \right) \right] \exp(i\Delta z \chi) \\ \times \exp \left[i \frac{\Delta z}{2} \left(\frac{\nabla_T^2}{(\nabla_T^2 + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} \right) \right] U(r, 0) + o(\Delta z^3) \quad (\text{D.12})$$

Ce schéma de propagation peut être vu en trois étapes : Une étape de propagation sur une petite distance $\Delta z/2$, l'introduction d'un déphasage $\Delta z \chi$ et une nouvelle propagation sur $\Delta z/2$. Dans le cas d'un milieu non-linéaire, le déphasage varie transversalement puisque χ est proportionnel à la répartition d'indice, elle même liée à l'amplitude du champ électrique par la relation classique :

$$n(r, z) = n_0 + \gamma \times I(r, z)$$

Jusqu'ici, la symétrie cylindrique n'a pas introduit de changement par rapport à la description originale de Feit and Fleck. Pour effectuer les propagations décrites par les deux opérateurs extrêmes de l'expression [D.12](#), nous allons maintenant devoir passer dans l'espace de Fourier. Comme nous avons choisi la symétrie cylindrique la transformation utilisée est la transformation de Hankel d'ordre 0 décrite par les relations suivantes :

$$\hat{U}(\sigma, z) = 2\pi \int_0^\infty r U(r, z) J_0(2\pi\sigma r) dr \quad (\text{D.13})$$

$$U(r, z) = 2\pi \int_0^\infty \sigma \hat{U}(\sigma, z) J_0(2\pi\sigma r) d\sigma \quad (\text{D.14})$$

Ainsi, l'application du laplacien transverse au champ $U(r, z)$ peut s'exprimer sous la forme :

$$\nabla_T^2 U(r, z) = 2\pi \int_0^\infty \sigma \hat{U}(\sigma, z) \nabla_T^2 [J_0(2\pi\sigma r)] d\sigma \quad (\text{D.15})$$

Or, par définition, la fonction $J_0(2\pi\sigma r)$ vérifie l'équation :

$$\frac{\partial^2 J_0(2\pi\sigma r)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial J_0(2\pi\sigma r)}{\partial r} + (2\pi\sigma)^2 J_0(2\pi\sigma r) = 0 \quad (\text{D.16})$$

Ainsi, on vérifie que l'opérateur laplacien transverse dans l'espace réciproque de la transformée de Hankel revient à multiplier par $-(2\pi\sigma)^2$. L'opérateur de propagation décrit par les deux termes extrêmes de la relation [D.12](#) devient simplement, dans l'espace réciproque :

$$\hat{P} = \exp \left[i \frac{\Delta z}{2} \left(\frac{-(2\pi\sigma)^2}{(-(2\pi\sigma)^2 + k^2)^{\frac{1}{2}} + k} \right) \right] \quad (\text{D.17})$$

Ainsi, il est possible d'évaluer l'amplitude complexe du champ à la position $z + \Delta z$ à partir de l'amplitude à la position z à l'aide d'une multiplication par l'opérateur \hat{P} dans l'espace réciproque, une multiplication dans l'espace réel par $\exp(i\Delta z \chi)$ puis une nouvelle multiplication par l'opérateur \hat{P} dans l'espace réciproque.

Annexe E

Propriétés optiques linéaires de quelques verres silicates

Nous présentons ici quelques propriétés optiques de verres silicates. Ces données concernent une vingtaine de verres fabriqués par OHARA CORPORATION et sont disponibles sur le site <http://www.oharacorp.com>.

E.1 Diagramme d'Abbe : indice et dispersion

Pour classer les différents types de verres, leur position est indiquée sur le diagramme d'Abbe qui comporte le nombre d'Abbe ν_d en abscisse et l'indice linéaire n_d en ordonnée [E.1](#). Le nombre d'Abbe est caractéristique de la dispersion chromatique et est défini comme :

$$\nu_d = \frac{n_d - 1}{n_F - n_C}$$

où n_d , n_F et n_C sont les indices de réfractions mesurés respectivement avec la raie jaune de l'Helium (587,56 nm), la raie bleue de l'hydrogène (486,13 nm) et la raie rouge de l'hydrogène (656,27 nm).

E.2 Absorption linéaire

Le coefficient d'absorption linéaire d'une vingtaine de verres est également représenté pour 4 longueurs d'ondes à la figure [E.2](#).

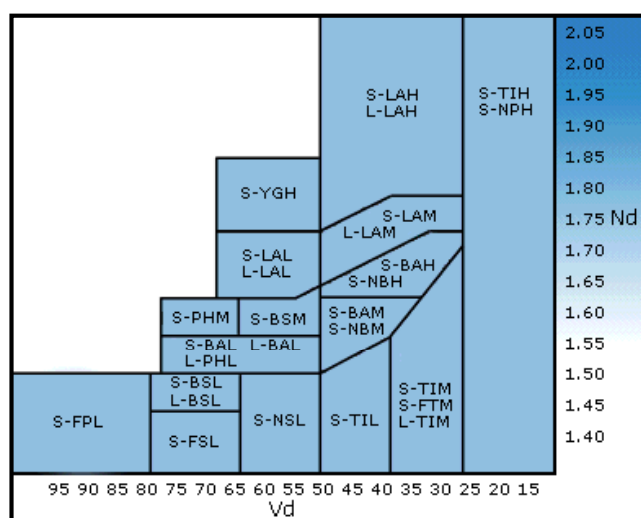


FIG. E.1 – *Diagramme d'Abbe des verres de OHARA CORPORATION*

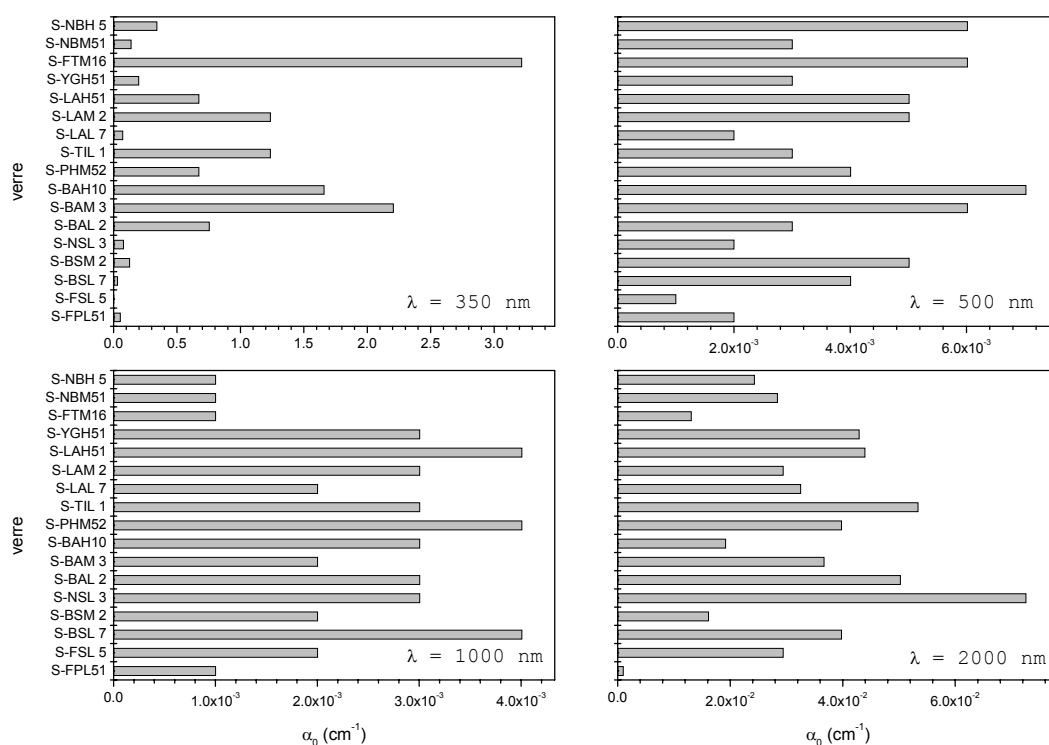


FIG. E.2 – *Coefficients d'absorption des verres de OHARA CORPORATION à $\lambda = 350\text{ nm}$, 500 nm , 1000 nm et 2000 nm*

Bibliographie

- [1] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, and E. W. Van Stryland. High-sensitivity, single-beam n_2 measurement. *Opt. Lett.*, 14(17) :955–957, September 1989.
- [2] E. Yablonovitch and N. Bloembergen. Avalanche ionization and the limiting diameter of filaments induced by light pulses in transparent multimedia. *Phys. Rev. Lett.*, 29 :905–910, 1972.
- [3] A. S. Epifanov. Theory of electron-avalanche ionization induced in solids by electromagnetic waves. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 17 :2018–2022, 1981.
- [4] M. Sparks et al. Theory of electron-avalanche breakdown in solids. *Phys. Rev. B*, 24 :3519–3536, 1981.
- [5] N. Bloembergen. Role of cracks, pores, and absorbing inclusions on laser induced damage threshold at surfaces of transparent dielectrics. *Appl. Opt.*, 12 :661–664, 1973.
- [6] R. W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, Inc., 1992.
- [7] J. Sajer. Stimulated brillouin scattering and front surface damage. communication au 35e Laser Damage Symposium, Boulder, E.U., Proc. SPIE à venir, 2003.
- [8] S. Debrus, J. Lafait, M. May, N. Pinçon, D. Prot, C. Sella, and J. Venturini. Z-scan determination of the third order optical nonlinearity of gold :silica nanocermets. *J. Appl. Phys.*, 88 :4469, 2000.
- [9] D. Prot, D. B. Stout, J. Lafait, N. Pinçon, B. Palpant, and S. Debrus. Local electric field enhancements and large third order optical nonlinearity in nanocomposite materials. *J. Opt. A*, 4(5) :S99, 2002.
- [10] N. Pinçon, B. Palpant, D. Prot, E. Charron, and S. Debrus. Third-order nonlinear optical response of au :sio2 thin films : influence of gold nanoparticle concentration and morphologic parameters. *Eur. Phys. J. D*, 19(3) :395, 2002.

- [11] N. Pinçon-Roetzing, D. Prot, B. Palpant, E. Charron, and S. Debrus. Large optical kerr effect in matrix-embedded metal nanoparticles. *Materials Science and Engineering C*, 19 :51, 2002.
- [12] Annelise During. *Microscopie photothermique et endommagement laser*. PhD thesis, Université de droit, d'économie et des sciences d'Aix-Marseille III, decembre 2002.
- [13] J-Y. Natoli et al. Localized pulsed laser interaction with sub-micronic gold particles embedded in silica : a method for investigating laser damage initiation. *Optic Express*, 11 :824–830, 2003.
- [14] F. Bonneau et al. Study of uv laser interaction with gold nanoparticles embedded in silica. *Appl. Phys. B*, 75 :803–815, 2002.
- [15] S. Papernov et al. Correlation between embedded single gold nanoparticles in sio2 thin film and nanoscale crater formation induced by laser-pulsed irradiation. *J. Appl. Phys.*, 92 :5720–5728, 2002.
- [16] F. Bonneau et al. Simulations of laser damage of sio2 induced by a spherical inclusion. *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 2000*, volume 4347 of Proc. SPIE :308–315, 2001.
- [17] Laurent Gallais. *Endommagement laser dans les composants optiques : métrologie, analyse statistique et photo-induite des sites initiateurs*. PhD thesis, Université de droit, d'économie et des sciences d'Aix-Marseille III, novembre 2002.
- [18] J-Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri, and C. Amra. *Appl. Opt.*, 41 :3156–3166, 2002.
- [19] H. Bercegol et al. Statistical distribution of laser damage and spatial scaling law for a model with multiple defects cooperation in damage. *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 1999*, volume 3902 of Proc. SPIE, 2000.
- [20] P. Volto et al. Refined statistical measurements of laser damage. *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 1999*, volume 3902 of Proc. SPIE, 2000.
- [21] J. Neauport et al. Large scale laser damage experiments on lil mirrors. *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 1999*, volume 3902 of Proc. SPIE, 2000.
- [22] M. D. Feit et al. Extrapolation of damage test data to predict performance of large-area nif optics. *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 1998*, volume 3578 of Proc. SPIE, 1999.

-
- [23] J. Hue et al. R-on-1 automatic mapping : a new tool for laser damage testing. *Laser-Induced Damage in Optical Materials : 1995*, volume 2714 of Proc. SPIE :90–101, 1996.
- [24] J. W. Arenberg et al. Correlating laser damage tests. *Appl. Opt.*, 28 :123–126, 1989.
- [25] E. W. Van Stryland et al. Pulse width and focal volume dependence of laser-induced breakdown. *Phys. Rev. B*, 23 :2144–2151, 1981.
- [26] M. Born and E. Wolf. *Principles of optics*. Cambridge University Press, 7th (expanded) edition, 1999.
- [27] R. Petit. *Ondes électromagnétiques en radioélectricité et en optique*. Masson, 1993.
- [28] P. N. Butcher and D. Cotter. *The elements of nonlinear optics*. Cambridge University Press, 1990.
- [29] S. V. Popov, YU. P. Svirko, and N. I. Zheludev. *Susceptibility tensors for nonlinear optics*. Optics and optoelectronics. Institute of Physics Publishing, 1995.
- [30] N. Bloembergen. *Nonlinear Optics*. World Scientific, 1996.
- [31] N. L. Boling, A. J. Glass, and A. Owyong. Empirical relationships for predicting nonlinear refractive index changes in optical solids. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-14 :601–608, 1978.
- [32] P. R. Longaker and M. M. Litvak. Perturbation of the refractive index of absorbing media by a pulsed beam. *J. Appl. Phys.*, 40(10) :4033–4041, September 1969.
- [33] D. I. Kovsh et al. Nonlinear optical propagation for optical limiting. *Appl. Opt.*, 38(24) :5168–5180, August 1999.
- [34] S. R. J. Brueck, H. Kildal, and L. J. Belanger. Photo-acoustic and photo-refractive detection of small absorptions in liquids. *Opt. Commun.*, 34(2) :199–204, August 1980.
- [35] J. M. Heritier. Electrostrictive limit and focusing effects in pulsed photoacoustic detection. *Opt. Commun.*, 44(4) :267–272, January 1983.
- [36] H. Bach and N. Neuroth. *The Properties of Optical Glass*. Springer, 1995.
- [37] M. Bass, E. W. Van Stryland, D. R. Williams, and W. L. Wolfe. *Handbook of Optics (II), Devices, Measurements and Properties*. McGraw-Hill.
- [38] E. Dieulesaint and D. Royer. *Ondes élastiques dans les solides*. MASSON et cie, 1974.

- [39] Gu Liu. Theory of the photoacoustic effect in condensed matter. *Appl. Opt.*, 21(5) :955–960, March 1981.
- [40] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T-H. Wei, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland. Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam. *IEEE J. Quantum Electron.*, 26(4) :760–769, April 1990.
- [41] P. D. Maker and R. W. Terhune. Study of optical effects due to an induced polarization third order in the electrical field strength. *Phys. Rev.*, 137(3A) :A801–A818, August 1964.
- [42] M. D. Levenson. Feasibility of measuring the nonlinear index of refraction by third-order frequency mixing. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-10(2) :110–115, February 1974.
- [43] R. Adair, L. L. Chase, and S. A. Payne. Nonlinear refractive index measurements of glasses using three-wave frequency mixing. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4(6) :875–881, June 1987.
- [44] D. Milam and J. Weber. Measurement of nonlinear refractive index coefficients using time-resolved interferometry : Application to optical materials for high-power neodymium lasers. *J. Appl. Phys.*, 47(6) :2497–2501, June 1976.
- [45] R. Quintero-Torres and M. Thakur. Measurement of the nonlinear refractive index of polydiacetylene using michelson interferometry and z-scan. *J. Appl. Phys.*, 85(1) :401–403, January 1999.
- [46] G. Boudebs, M. Chis, and X. Nguyen Phu. Third-order susceptibility measurement by a new mach-zender interferometry technique. *J. Opt. Soc. Am. B*, 18(5) :623–627, May 2001.
- [47] G. Boudebs, F. Sanchez, J. Troles, and F. Smektala. Nonlinear optical properties of chalcogenide glasses : comparison between mach-zender interferometry and z-scan techniques. *Opt. Commun.*, 199 :425–433, December 2001.
- [48] A. Feldman, D. Horowitz, and R. M. Waxler. Mechanisms for self-focusing in optical glasses. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-9(11) :1054–1061, November 1973.
- [49] W. L. Smith, J. H. Bechtel, and N. Bloembergen. Dielectric-breakdown threshold and nonlinear refractive index measurements with picosecond laser pulses. *Phys. Rev. B*, 12(2) :706–714, July 1975.

-
- [50] H. Bercegol et al. Self-focusing and surface damage in fused silica windows of variable thickness with uv laser pulses. communication au 35e Laser Damage Symposium, Boulder, E.U., Proc. SPIE à venir, 2003.
- [51] D. Weaire, B. S. Wherrett, D. A. B. Miller, and S. D. Smith. Effect of low-power nonlinear refraction on laser-beam propagation in insb. *Opt. Lett.*, 4(10) :331–333, October 1979.
- [52] W. E. Williams, M. J. Soileau, and E. V. Stryland. Optical switching and n2 measurements in cs2. *Opt. Commun.*, 50(4) :256–260, June 1984.
- [53] P. P. Banerjee, R. M. Misra, and M. Maghraoui. Theoretical and experimental studies of propagation of beams through a finite sample of cubically nonlinear material. *J. Opt. Soc. Am. B*, 8(5) :1072–1080, May 1991.
- [54] T. Xia, J. Hagan, M. Sheik-Bahae, and E. W. Van Stryland. Eclipsing z-scan measurement of $\lambda/1e4$ wave-front distortion. *Opt. Lett.*, 19(5) :317–319, March 1994.
- [55] M. Françon. *La granularité laser (speckle) et ses applications en optique*. Masson, 1977.
- [56] F. M. Dickley and S. C. Holswade. *Laser Beam Shaping : Theory and Techniques*. Marcel Dekker, Inc., 2000.
- [57] B. Y. Zel’dovich, A. V. Mamaev, and V. V. Shkunov. *Speckle-wave interactions in applications to holography and nonlinear optics*. CRC Press, Inc., 1995.
- [58] J. A. Hermann and R. G. McDuff. Analysis of spatial scanning with thick optically nonlinear media. *J. Opt. Soc. Am. B*, 10(11) :2056–2064, November 1993.
- [59] A. E. Siegman. *Lasers*. University Science Book, 1986.
- [60] R. E. Samad and N. D. Vieira Jr. Analytical description of z-scan on-axis intensity based on the huygens-fresnel principle. *J. Opt. Soc. Am. B*, 15(11) :2742–2746, November 1998.
- [61] P. B. Chapple, J. Staromlynska, and R. G. McDuff. Z-scan studies in the thin- and thick-sample limits. *J. Opt. Soc. Am. B*, 11(6) :975–982, June 1994.
- [62] W. Zhao and P. Palffy-Muhoray. Z-scan technique using top-hat beams. *Appl. Phys. Lett.*, 63(12) :1613–1615, September 1993.
- [63] Bum Ku Rhee, Jin Seob Byun, and E. W. Van Stryland. Z-scan using circularly symmetric beams. *J. Opt. Soc. Am. B*, 13(12) :2720–2723, December 1996.

- [64] P. Chen, D. A. Oulianov, I. V. Tomov, and P. M. Rentzepis. Two-dimensionnal z-scan for arbitrary beam shape and sample thickness. *J. Appl. Phys.*, 85(10) :7043–7050, May 1999.
- [65] M. Sheik-Bahae, J. Wang, R. DeSalvo, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland. Measurement of nonlinearities using a two-color z-scan. *Opt. Lett.*, 17(4) :258–260, February 1992.
- [66] J. Castillo, V. P. Kozich, and A. Marcano O. Thermal lensing resulting from one- and two-photon absorption studied with a two color time resolved z-scan. *Opt. Lett.*, 19(3) :171–173, February 1994.
- [67] J. Wang, M. Sheik-Bahae, A. A. Said, D. J. Hagan, and E. W. Van Stryland. Time resolved z-scan measurements of optical nonlinearities. *J. Opt. Soc. Am. B*, 11(6) :1009–1017, June 1994.
- [68] Tadashi Kawazoe et al. Measurement of nonlinear refractive index by time-resolved z-scan technique. *Opt. Commun.*, 160 :125–129, February 1999.
- [69] T-H. Wei et al. Mechanism of reverse saturable absorption in chloro-aluminium phtalocyanine solution studied with z-scan. *Chem. Phys. Lett.*, 314 :403–410, 1999.
- [70] A. V. Afanas'ev et al. Picosecond z-scan measurements of nonlinear optical susceptibility of films and solutions of novel organometallic polymers. *Opt. Commun.*, 201 :207–215, 2002.
- [71] E. Giorgetti et al. Measurements of the third order nonlinearity of a soluble polycarbazolydiacetylene by picosecond z-scan at 1064 and 1500nm. *Synth. Metals*, 127 :139–142, 2002.
- [72] B. Yu et al. Optical nonlinearities of fe₂o₃ nanoparticles investigated by z-scan technique. *Opt. Mat.*, 8 :249–254, 1997.
- [73] B. Yu et al. Optical nonlinear properties of pbs nanoparticules studied by the z-scan technique. *Opt. Mat.*, 11 :17–21, 1998.
- [74] H. P. Li et al. Femtosecond z-scan investigation of nonlinear refraction in surface modified pbs nanoparticles. *Opt. Mat.*, 14 :321–327, 2000.
- [75] Y. Song et al. Signs alteration of nonlinear refraction of cubane-like shaped clusters from nanosecond to picosecond pulses. *Opt. Commun.*, 192 :273–276, 2001.
- [76] A. G. Bezerra Jr et al. Exploitation of the z-scan technique as a method to optically probe pka in organic materials : application to porphyrin derivatives. *Opt. Lett.*, 25(5) :323–325, March 2000.

-
- [77] R. E. de Araujo et al. Measurement of pka of organic molecules using third-order nonlinear optics. *Chem. Phys. Lett.*, 330 :347–353, 2000.
- [78] J. Castillo et al. Nonlinear optical evidences of aggregation in asphalte-toluene solutions. *Fuel*, 80 :1239–1243, 2001.
- [79] A. A. Said, M. Sheik-Bahae, D. J. Hagan, T-H. Wei, J. Wang, J. Young, and E. W. Van Stryland. Determination of bound-electronic and free-carrier nonlinearities in znse, gaas, cdte, and znte. *J. Opt. Soc. Am. B*, 9(3) :405–414, March 1992.
- [80] Kyu-Haeng Lee, Wook-Rae Cho, Jung-Ho Park, Jong-Sup Kim, Seung-Han Park, and Ung Kim. Measurement of free-carrier nonlinearities in znse based on the z-scan technique with a nanosecond laser. *Opt. Lett.*, 19(15) :1116–1118, August 1994.
- [81] D. O. Caplan, G. S. Kanter, and P. Kumar. Characterization of dynamic optical nonlinearities by continuous time-resolved z-scan. *Opt. Lett.*, 21(17) :1342–1344, September 1996.
- [82] P. A. Marquez Aguilar, J. J. Sanchez Mondragon, and S. Stepanov. Modulation z-scan technique for characterizat on of photorefractive crystals. *Opt. Lett.*, 21(19) :1541–1543, October 1996.
- [83] I. J. Blewett et al. Fastscan z-scan system for determining optical nonlinearities in semiconductors. *Optics and Laser Technology*, 29 :355–358, 1997.
- [84] K. S. Bindra et al. Intensity dependence of the z-scan in semiconductor-doped glasses for separation of third and fifth order contributions in the below band gap region. *Opt. Commun.*, 168 :219–225, 1999.
- [85] P. A. Marquez Aguilar et al. Z-scan experiments with cubic photorefractive crystal bi12tio20. *Opt. Commun.*, 118 :165–174, 1995.
- [86] S. Bian. Estimation of photovoltaic field in linbo3 crystal by z-scan. *Opt. Commun.*, 141 :292–297, 1997.
- [87] A. Siahmakoun, D. Breitling, and A. Najaf-Zadeh. Continuous-wave z-scan measurement of photorefractive sbn :60. *Appl. Opt.*, 39(29) :5360–5366, October 2000.
- [88] A. V. Kir’yanov, Yu. O. Barmenkov, A. N. Starodumov, V. P. Leppanen, J. Vanhanen, and T. Jaaskelainen. Application of the z-scan technique to a saturable photorefractive medium with the overlapped ground and excited state absorption. *Opt. Commun.*, 177 :417–423, 2000.

- [89] Chong Hoon Kwak et al. Analysis of asymmetric z-scan measurement for large optical nonlinearities in an amorphous as₂s₃ thin film. *J. Opt. Soc. Am. B*, 16(4) :600–604, April 1999.
- [90] G. S. Maciel. Picosecond z-scan measurements on a glass-ceramic containig sodium niobate nanocrystals. *Opt. Commun.*, 203 :441–444, 2001.
- [91] T. Hashimoto et al. Optical nonlinearity of tio₂-containing glasses measured by z-scan technique. *J. Non-Crys. Sol.*, 253 :30–36, 1999.
- [92] M. Kyoung et al. Nonlinear absorption and refractive index measurements of silver nanorods by the z-scan technique. *Opt. Commun.*, 171 :145–148, 1999.
- [93] T. Catunda et al. Time resolved z-scan and thermal lens measurement in er³⁺ and nd³⁺ doped fluorindate glasses. *J. Non-crys. Sol.*, 213-214 :225–230, 1997.
- [94] G. Battaglin et al. Laser-irradiation effects during z-scan measurement on metal nanocluster composite glasses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17(2) :213–218, February 2000.
- [95] G. Battaglin et al. On the role of laser-composite interaction in the z-scan analysis of metal nanocluster glasses. *N.I.M. B*, 166-167 :704–710, 2000.
- [96] J. Zhou et al. Z-scan measurement of a novel amorphous molecular material. *Opt. Comm.*, 191 :427–433, 2001.
- [97] S. K. Lam et al. Z-scan measurement of the nonlinear absorption and refractive index for fluorescein 548-doped organically modified sol-gel silica films. *Opt. Mat.*, 18 :235–241, 2001.
- [98] S. Venugopal Rao et al. Nonlinear absorption and excited state dynamics in rhodamine b studied using z-scan and degenerate four wave mixing. *Chem. Phys. Lett.*, 361 :439–445, 2002.
- [99] J. E. Aber, M. C. Newstein, and B. A. Garetz. Femtosecond optical kerr effect measurement in silicate glasses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17(1) :120–127, January 2000.
- [100] I. Kang, T. D. Krauss, F. W. Wise, B. G. Aitken, and N. F. Borelli. Femtosecond measurement of enhanced optical nonlinearities of sulfide glasses and heavy-metal-doped oxide glasses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 12(11) :2053–2059, November 1995.
- [101] L. D. Merckle et al. Laser-induced bulk damage in crystalline and fused quartz at 1.064, 0.532 and 0.355 microns. *J. Appl. Phys.*, 55 :772–775, 1984.
- [102] L. D. Merckle et al. Temperature dependence of laser induced bulk damage in sio₂ and borosilicate glass. *Phys. Rev. B*, 38 :1473–1482, 1988.

-
- [103] A. A. Said et al. Measurement of the optical damage threshold in fused quartz. *Appl. Opt.*, 34(18) :3374–3376, 1995.
 - [104] S. M. Mian, B. Taheri, and J. P. Wicksted. Effects of beam ellipticity on z-scan measurements. *J. Opt. Soc. Am. B*, 13(5) :856–863, May 1996.
 - [105] Yong-Liang Huang and Chi-Kuang Sun. Z-scan measurement with an astigmatic gaussian beam. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17(1) :43–47, January 2000.
 - [106] K.S. Repasky, J.K. Brasseur, J.G. Wessel, and J.L. Carlsten. Correcting an astigmatic non-gaussian beam. *Applied Optics*, 36 :1536, 1997.
 - [107] M. D. Feit and J. A. Fleck. Beam nonparaxiality, filament formation, and beam breakup in the self-focusing of optical beams. *J. Opt. Soc. Am. B*, 5(3) :633–640, March 1988.
 - [108] J. W. Goodman. *Introduction to Fourier Optics*. McGraw-Hill, 1968.
 - [109] W. H. Southwell. Validity of the fresnel approximation in the near field. *J. Opt. Soc. Am. B*, 71(1) :7–14, January 1981.
 - [110] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, and B. P. Flannery. *Numerical recipes in FORTRAN*. Cambridge University Press, second edition edition.
 - [111] A. E. Siegman. Quasi fast hankel transform. *Opt. Lett.*, 1(1) :13–15, July 1977.
 - [112] J. D. Talman. *J. Comp. Phys*, 29(35), 1978.
 - [113] A. J. S. Hamilton. Uncorrelated modes of the nonlinear power spectrum. *Mon. Not. R. Astron. Soc.*, 312(257), 2000.
 - [114] W. Koechner. *Solid-State Laser Engineering*. Springer Series in Optical Sciences. Springer-Verlag, 4th edition edition, 1996.
 - [115] R. Y. Chiao, E. Garmire, and C. H. Townes. Self-trapping of optical beams. *Phys. Rev. Lett.*, 13 :479–482, 1964.
 - [116] T. A. Laine and A. T. Friberg. Self-guided waves and exact solutions of the nonlinear helmholtz equation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17(5) :751–757, May 2000.
 - [117] P. L. Kelley. Self-focusing of optical beams. *Phys. Rev. Lett.*, 15(26) :1005–1008, December 1965.
 - [118] W. G. Wagner, H. A. Haus, and J. H. Marburger. Large-scale self-trapping of optical beams in the paraxial ray approximation. *Phys. Rev.*, 175(1) :256–266, November 1968.

- [119] E. L. Dawes and J. H. Marburger. Computer studies of self-focusing. *Phys. Rev.*, 179(3) :862–868, March 1969.
- [120] Gadi Fibish and Alexander L. Gaeta. Critical power for self-focusing in bulk media and in hollow waveguide. *Opt. Lett.*, 25(5) :335–337, March 2000.
- [121] B. Crosignani, P. Di Porto, and A. Yariv. Nonparaxial equation for linear and nonlinear optical propagation. *Opt. Lett.*, 22(11) :778–780, June 1997.
- [122] A. Ciattoni, P. Di Porto, B. Crosignani, and A. Yariv. Vectorial nonparaxial propagation equation in the presence of a tensorial refractive-index perturbation. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17(5) :809–819, May 2000.
- [123] A. Ciattoni, C. Conti, E. DelRe, P. Di Porto, B. Crosignani, and A. Yariv. Polarization and energy dynamics in ultrafocused optical kerr propagation. *Opt. Lett.*, 27(9) :734–736, May 2002.
- [124] M. D. Feit and J. A. Fleck. Simple spectral method for solving propagation problems in cylindrical geometry with fast fourier transforms. *Opt. Lett.*, 14(13) :662–664, July 1989.
- [125] P. Chamorro-Posada, G. S. McDonald, and G. H. C. New. Non-paraxial beam propagation methods. *Opt. Commun.*, 192 :1–12, May 2001.
- [126] Sien Chi and Qi Guo. Vector theory of self-focusing of an optical beam in kerr media. *Opt. Lett.*, 20(15) :1598–1600, August 1995.
- [127] C. S. Milsted and C. D. Cantrell. Vector effects in self-focusing. *Phys. Rev. A*, 53(5) :3536–3542, May 1996.
- [128] R. de la Fuente, O. Varela, and H. Michinel. Fourier analysis of non-paraxial self-focusing. *Opt. Commun.*, 173 :403–411, January 2000.
- [129] W. T. White, M. A. Henesian, and M. J. Weber. Photothermal-lensing measurements of two-photon-induced color centers in borosilicates glasses at 532 nm. *J. Opt. Soc. Am. B.*, 2(9) :1402–1408, 1985.
- [130] T. Olivier and H. Akhouayri. Mesure de l’indice de réfraction de la silice amorphe dans le régime nanoseconde. communication au congrès de la SFO, OPTIX 2001, Marseille, France, 2001.
- [131] F. Billard, T. Olivier, and H. Akhouayri. Study and experimental settings of the z-scan method for accurate nonlinear refractive index and absorption metrology. communication au 35e Laser Damage Symposium, Boulder, E.U., Proc. SPIE à venir, 2003.

- [132] T. Olivier, F. Billard, and H. Akhouayri. Z-scan theoretical and experimental studies for accurate measurements of nonlinear refractive index and absorption of optical glasses near damage threshold. communication au 35e Laser Damage Symposium, Boulder, E.U., Proc. SPIE à venir, 2003.
- [133] T. Olivier, F. Billard, and H. Akhouayri. Z-scan studies of the nonlinear refractive index of fused silica in the nanosecond regime. communication au congrès Optical System Design, Saint-Etienne, France, Proc. SPIE à venir, 2003.
- [134] E. Garmire, R. Y. Chiao, and C. H. Townes. Dynamics and characteristics of the self-trapping of intense light beams. *Phys. Rev. Lett.*, 16 :347–349, 1966.
- [135] N. Bloembergen and Y. R. Shen. Multimode effects in stimulated raman emission. *Phys. Rev. Lett.*, 13(24) :720–724, December 1964.
- [136] J. Ducuing and N. Bloembergen. Statistical fluctuations in nonlinear processes. *Phys. Rev.*, 133(6A) :A1493–A1502, October 1964.
- [137] M. D. Feit and J. A. Fleck. Light propagation in graded index fibers. *Appl. Opt.*, 17 :3390, 1979.

Résumé

Lorsqu'un faisceau laser de forte puissance traverse un matériau transparent, l'auto-focalisation peut mener à une dégradation de la surface d'onde ou conduire à un endommagement du matériau. Afin de mieux comprendre ces phénomènes, la mesure précise de l'indice de réfraction non-linéaire est capitale. Dans le régime nanoseconde, plusieurs mécanismes peuvent mener à une variation photo-induite de l'indice de réfraction non-linéaire. Afin d'étudier les variations d'indice de réfraction photo-induites dans le régime nanoseconde, un banc de mesure sensible de faibles indices de réfraction non-linéaire a été développé. Ce banc de mesure est basé sur une méthode de mesure de déformation de faisceau : la méthode de Z-scan. A l'aide d'une parfaite maîtrise de la métrologie et d'un algorithme de simulation très général, l'indice de réfraction non-linéaire peut être mesuré avec une sensibilité de $\lambda/3000$ sur la variation de chemin optique dans le matériau et une erreur absolue estimée à 12% à 1064 nm et 16% à 532 nm sur l'indice de réfraction non-linéaire. Dans ces conditions, l'indice de réfraction non-linéaire de la silice et du BK7 a pu être mesuré à 1064 nm et à 532 nm . Une contribution non négligeable de l'électrostriction et des effets thermiques a pu être constatée.

Mots-clefs : optique non-linéaire, indice de réfraction non-linéaire, absorption non-linéaire, électrostriction, effets thermiques, autofocalisation, Z-scan, métrologie, propagation laser, impulsion nanoseconde, silice, verres optiques, solarisation, endommagement laser

Abstract

When a high power laser beam goes through a transparent material, self-focusing may lead to a degradation of the wave surface quality or to a damage of the material. In order to have a better understanding of these phenomena, it is crucial to obtain an accurate measurement of the nonlinear refractive index. In the nanosecond regime, several mechanisms may lead to a photoinduced variation of the nonlinear refractive index. In order to study the photoinduced variations of the nonlinear refractive index in the nanosecond regime, a sensitive measurement bench of small nonlinear refractive indexes has been developed. This measurement bench is based on a beam distortion measurement method : the Z-scan method. Thanks to a perfect mastery of the metrology and a very general simulation algorithm, the nonlinear refractive index can be measured with a sensitivity equal to $\lambda/3000$ on the optical path variation inside the material and an absolute error estimated to be 12% at 1064 nm and 16% at 532 nm on the nonlinear refractive index. In these conditions, the nonlinear refractive index of silica and BK7 was measured at 1064 nm and 532 nm . A non negligible contribution of electrostriction and thermal effects was noticed.

Keywords : nonlinear optics, nonlinear refractive index, nonlinear absorption, electrostriction, thermal effects, self-focusing, Z-scan, metrology, laser propagation, nanosecond pulse, silica, optical glasses, solarization, laser damage